

Y. QUERE

ORSAY
Série A, n°
N° d'ordre :
875

T H E S E

PRESENTEE

A LA FACULTE DES SCIENCES D'ORSAY

POUR L'OBTENTION

du DOCTORAT D'ETAT
Sciences Physiques - Mention Chimie

par

Claude WEINBERG

**CROISSANCE DE L'URANIUM α SOUS IRRADIATION
A BASSES TEMPERATURES**

Soutenue le 7 décembre 1971 devant la Commission d'Examen

MM. J. FRIEDEL Président

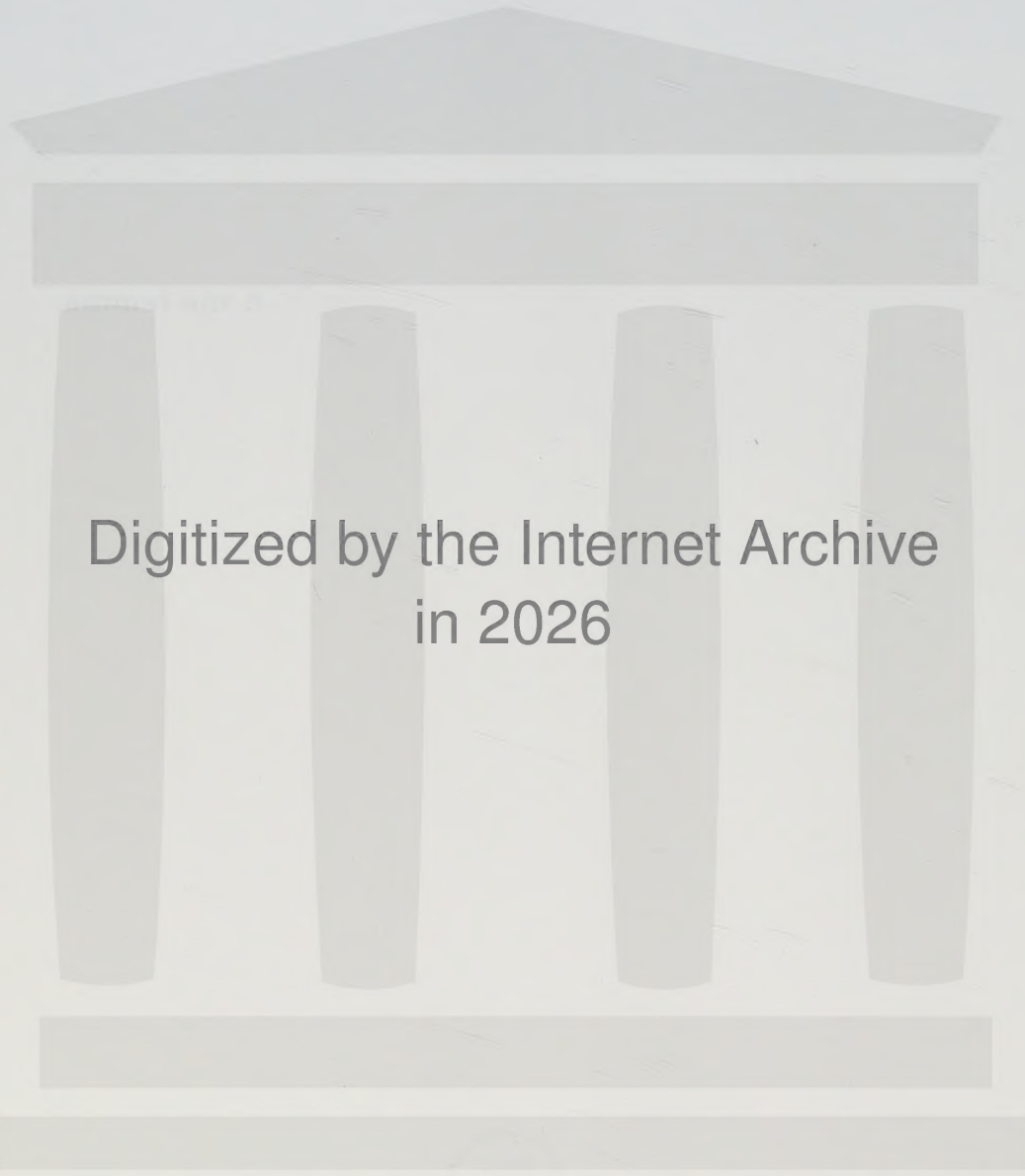
P. LACOMBE Examineurs

P. BARUCH

Y. QUERE



A ma femme



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41550410_0020

REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué au Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses, dans le Département d'Etudes des Combustibles à base de Plutonium. J'exprime ma gratitude à M. GRISON, Directeur de la Métallurgie, pour m'avoir autorisé à le présenter sous forme de thèse, et à MM. BLIN, BUSSY, MUSTELIER pour m'avoir procuré d'excellentes conditions de travail.

C'est avec un grand plaisir que je remercie M. le Professeur J. FRIEDEL de l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de présider le jury.

A M. le Professeur P. LACOMBE, directeur de cette thèse, j'exprime toute ma reconnaissance pour l'intérêt qu'il a porté à mon travail.

Je remercie également M. le Professeur P. BARUCH d'avoir accepté de faire partie du jury.

Je suis très heureux de pouvoir exprimer ma très profonde reconnaissance à M. Y. QUERE, Chef du Groupe d'Effets des Radiations, qui m'a constamment guidé et dont l'efficacité des conseils a permis de mener à bien cette étude.

Je veux dire ici mon amicale reconnaissance à M. R.R. CONTE pour le profit que j'ai tiré de ses réalisations cryogéniques et de ses conseils judicieux, et à M. J. DURAL pour son aide technique, sa compétence, sa conscience professionnelle et son abnégation.

Je remercie amicalement tous mes camarades du groupe (G. E. R.) en particulier M. J. LETEURTRE, pour les discussions fructueuses que j'ai eues avec eux au sein d'une atmosphère joyeuse.

Mes remerciements vont également à Mme PINGOUROUX pour son dévouement dans la réalisation pratique de cet ouvrage et à Mme BOY pour sa participation à la frappe.

Enfin je remercie MM. FRANZETTI et LAPORTE ainsi que le personnel de la Section d'Exploitation de TRITON qui par leur compréhension et leur collaboration ont permis le bon déroulement de nos expériences à 20 K, ainsi que MM. VOGL et BONING, de la Technische Hochschule de Munich, qui nous ont permis de faire des expériences à 4,6 K dans le réacteur de Garching.

TABLE DES MATIERES

	Page
INTRODUCTION.	1
CHAPITRE I : TECHNIQUES EXPERIMENTALES.	6
I. 1 - Dispositif d'irradiation.	6
I. 1. 1 - Les irradiations à température ordinaire.	6
I. 1. 2 - Irradiations dans l'azote liquide.	6
I. 1. 3 - Irradiations dans l'hydrogène liquide.	7
I. 1. 3. 1 - Boucle à 20 K.	7
I. 1. 3. 2 - Enregistrements des données expérimentales.	9
I. 1. 4 - Irradiations dans l'hélium liquide (4, 6 K).	9
I. 2 - Mesures des températures.	10
I. 3 - Mesure du taux de combustion τ .	10
I. 3. 1 - Calcul de τ .	10
I. 3. 2 - Mesure du flux instantané Φ .	11
I. 4 - Mesures des variations de longueur ($\Delta L/L$).	13
I. 4. 1 - Mesures optiques.	13
I. 4. 2 - Mesures électriques.	13
I. 4. 2. 1 - Principe.	15
I. 4. 2. 2 - Capsule d'irradiation.	15
I. 4. 2. 3 - Etalonnage.	15
I. 4. 2. 4 - Erreurs sur la mesure de ($\Delta L/L$).	17
I. 5 - Mesures de résistivité électrique.	19
I. 5. 1 - Méthode.	19
I. 5. 2 - Erreurs sur la mesure de R_x .	20
I. 5. 3 - Calculs de la variation de résistivité $\Delta \rho$.	21
I. 5. 4 - Erreurs sur $\Delta \rho$.	21
I. 6 - Les échantillons.	22
I. 6. 1 - Description.	22
I. 6. 2 - Rôle et détermination de la texture.	23
I. 6. 3 - Choix des dimensions de l'échantillon.	25
I. 6. 3. 1 - Choix de la longueur.	25
I. 6. 3. 2 - Choix du diamètre.	25
I. 6. 4 - Monocristal d'axe C.	28
CHAPITRE II : RESULTATS EXPERIMENTAUX.	29
II. 1 - Mesures optiques.	29
II. 1. 1 - Irradiation à température ordinaire.	29
II. 1. 2 - Irradiation dans l'azote liquide (77 K).	31
II. 2 - Mesures électriques.	33
II. 2. 1 - Irradiation à température ordinaire (40 °C).	33
II. 2. 2 - Irradiation dans l'hydrogène liquide.	35
II. 2. 2. 1 - Augmentation du flux instantané en cours d'irradiation.	35

II.2.2.2 - Flux instantané constant et température constante.	40
II.2.2.3 - Essais de recuits intermédiaires.	42
II.2.3 - Irradiation dans l'hélium liquide (4, 6 K).	44
II.2.3.1 - Influence du flux instantané.	44
II.2.3.2 - Résultats pour $UT\alpha$.	46
II.2.3.3 - Résultats pour UTe .	49
II.2.4 - Irradiation du monocristal.	50
II.2.4.1 - Détermination de T.K.	50
II.2.4.2 - Résultats obtenus sur le monocristal.	51
II.3 - Exploitation des résultats.	53
CHAPITRE III : RELATIONS ENTRE GRANDEURS PHYSIQUES (L ET ρ) ET CONCENTRATIONS DE DEFAUTS.	59
III.1 - Formules de résistivité.	61
III.1.1 - Résistivité des boucles.	61
III.1.2 - Contribution des défauts ponctuels.	63
III.2 - Formules de croissance.	64
III.2.1 - Cas des défauts ponctuels.	64
III.2.2 - Cas des boucles de dislocation.	65
III.2.3 - Contribution simultanée des boucles et des trous lacunaires.	68
III.2.4 - Cas d'un fil polycristallin.	69
III.3 - Conclusions.	70
- Formules globales.	70
- Conséquences.	71
CHAPITRE IV : INTERPRETATION DES RESULTATS.	74
- Rappels.	74
IV.1 - Modèle.	76
IV.1.1 - Nature et création des défauts.	76
IV.1.2 - Evolution des défauts.	77
IV.1.2.1 - Cas des interstitiels.	77
IV.1.2.2 - Cas des lacunes.	80
IV.1.2.3 - Cas des paires de Frenkel.	82
IV.1.3 - Résumé du modèle et discussion.	83
IV.1.4 - Résultats numériques.	86
IV.1.4.1 - Variations de longueur de $UT\alpha$ irradié à 4, 6. K.	86
IV.1.4.2 - Variations de longueur de $UT\alpha$ irradié à 36 K.	91
IV.2 - Autres interprétations.	93
IV.2.1 - Variations de résistivité électrique.	93
IV.2.2 - Influence de la température.	96
IV.2.3 - Influence des défauts d'écrouissage.	98
CONCLUION GENERALE.	102
BIBLIOGRAPHIE.	106
ANNEXES.	111
LEGENDE DES FIGURES	120

CROISSANCE DE L'URANIUM α SOUS IRRADIATION A BASSES TEMPERATURES

INTRODUCTION

Il est courant, en métallurgie, qu'un phénomène à sa découverte, pose d'abord un problème technologique. Une fois celui-ci résolu - ou contourné - le phénomène devient un sujet d'étude fondamentale. Peu à peu oublié par l'ingénieur, il fait les beaux jours du chercheur qui tente de le comprendre et souvent d'en généraliser les mécanismes à d'autres cas.

Découverte aux environs de 1950, la croissance de l'uranium fournit un bon exemple de cette démarche. Un monocristal - ou un échantillon à texture - d'uranium α se déforme sous irradiation sans changer fortement de volume^{*}. L'allongement se produit le long de l'axe $[010]$ tandis que l'échantillon se raccourcit dans la même proportion le long de $[100]$ et n'évolue pas le long de $[001]$ [1]. La figure 01 d'après J. BLOCH (Fontenay-aux-Roses) montre que l'effet n'est pas mince !

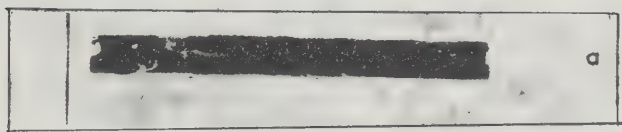
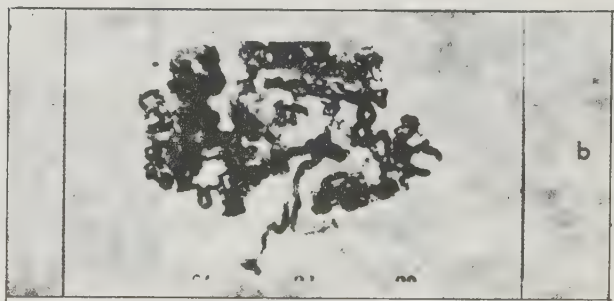


FIG.01

- Effet d'une irradiation par des neutrons sur l'uranium
- a) Cylindre d'uranium martelé, avant irradiation.
 - b) Le même après irradiation à 400 °C. Taux de combustion : 0,4 %.



Il est, en fait, si fort qu'il n'était pas question de s'en accommoder dans les réacteurs nucléaires et que l'on décida très vite de le supprimer plutôt que de le combattre : la solution consistait à utiliser, comme combustibles, des alliages de structure cubique qui ne croissent pas, comme certains alliages U-Mo, et ultérieurement des oxydes eux aussi cubiques.

^{*} L'uranium peut aussi changer fortement de volume si la température est telle que les gaz de fission précipitent en bulles. C'est là le phénomène du gonflement que nous n'aborderons pas ici.

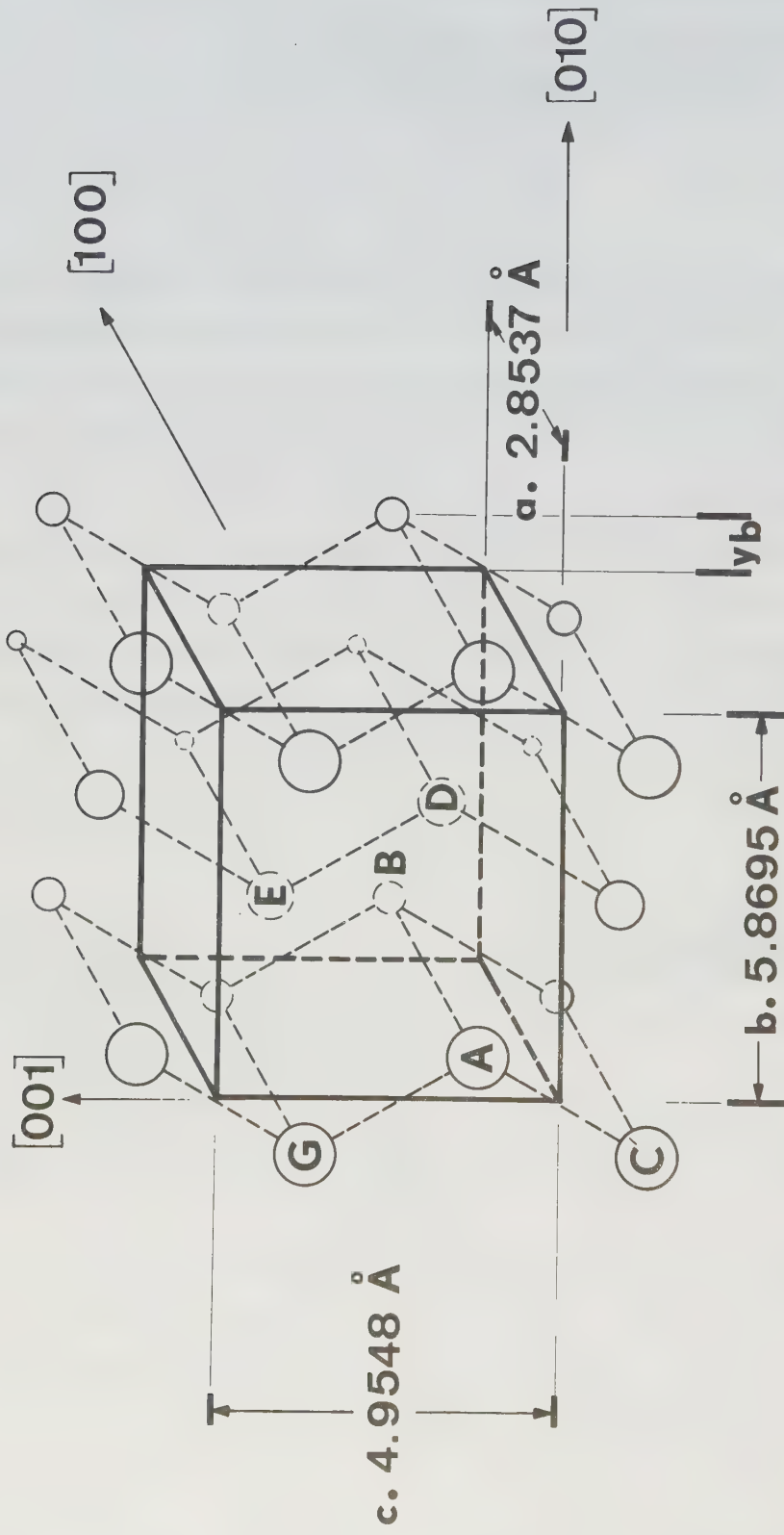


Figure 02 - Maille orthorombique de l'uranium α .

Le problème était donc "résolu". Il était alors mûr pour passer de l'usine - ou de l'atelier - au laboratoire. Que savait-on de lui au juste ? Peu de choses, sinon qu'il concernait l'uranium α orthorhombique (fig. 02), qu'il était proportionnel au taux de combustion^{*} τ :

$$\left(\frac{\Delta 1}{1} \right)_{[010]} = - \left(\frac{\Delta 1}{1} \right)_{[100]} = G\tau ;$$

qu'à température ordinaire ce coefficient de croissance G était égal à 420 [1] ; qu'enfin ce nombre G représentait le nombre d'atomes passant, par fission des faces (ou des plans) (100) aux faces ou aux plans (010) (voir page 59).

Bientôt plusieurs interprétations furent proposées : PUGH attribue la croissance à une déformation irréversible produite par les contraintes dues aux pointes de fission [2]. Pour SEIGLE et OPINSKY, l'anisotropie responsable de la croissance est celle de la diffusion des défauts ponctuels [3] tandis que pour GONSER [4] c'est celle des collisions focalisées.

Parallèlement des résultats expérimentaux nouveaux sont décrits. QUERE et al. montrent que la croissance est fortement accentuée à basses températures : le coefficient G dépasse 10 000 à 77 K [5a] et atteint 22 600 à 20 K [5b]. BUCKLEY montre que la croissance n'est pas l'appanage de l'uranium α . La plupart des métaux anisotropes (notamment Zr, Zn, Cd et Ti) croissent. Plus précisément la croissance est directement liée à l'anisotropie des coefficients de dilatation thermique λ [6].

D'où le mécanisme de croissance proposé par BUCKLEY : la pointe de fission crée des contraintes thermiques, anisotropes si λ est anisotrope. (Pour l'uranium $\lambda_{[100]} = 23,53.10^{-6}/^{\circ}\text{C}$, $\lambda_{[010]} = 1,16.10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ et $\lambda_{[001]} = 19,38.10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ à 0°C). Celles-ci correspondent à une compression le long de $[100]$ et à une tension relative le long de $[010]$, favorisant pour les boucles lacunaires le choix d'un vecteur de Burgers (V.B.) $[100]$ et pour les interstitielles le choix des V.B. $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle$. C'est alors cette favorisation du choix des V.B. des boucles qui rend compte de la croissance macroscopique, les boucles montant, en cours d'irradiation, en conservant leur V.B.

THOMPSON montre alors qu'en irradiant l'uranium par des protons (contraintes thermiques quasi-nulles) il n'y a pas de croissance [7]. HUDSON [8]

^{*}Le taux de combustion est le rapport du nombre d'atomes ayant subi la fission au nombre total d'atomes.

puis LETEURTRE [9] observent par microscopie électronique les boucles prévues par BUCKLEY. Le mécanisme par boucles est dès lors clairement établi.

Pourtant de nouvelles questions se posent. Pourquoi la croissance n'est-elle pas proportionnelle au taux de combustion τ comme le montre LETEURTRE par comptage de boucles à faibles taux [9] ? Pourquoi la décroissance le long de [100] ne débute-t-elle (contrairement à la croissance) qu'après un taux d'incubation - d'environ $3 \cdot 10^{-7}$ - comme l'établit LOOMIS [10] ? Surtout, comment les boucles se forment-elles ?

LETEURTRE donne bientôt une série de réponses à ces questions [9 - 11 - 12] notamment en postulant que le résidu d'une fission comprend des amas lacunaires non formés en boucles et qu'il faut un deuxième amas se formant à proximité immédiate du premier pour qu'une boucle germe. Il montre que chaque fission crée, à température ordinaire, environ 100 cascades donnant lieu à boucle et que pour chacune, les volumes contenant les interstitiels et les lacunes sont respectivement $4 \cdot 10^{-18}$ et $2 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^3$.

On le voit, la croissance qui fut au début un problème technologique, puis passa au rang d'étude fondamentale assez spécifique, est donc devenue là un outil dans l'étude très générale de la germination des boucles. Notamment c'est en s'inspirant des études de croissance que BRENAC et MASOUNAVE étudièrent la formation des boucles dans le tungstène [13] et dans l'or [14] tandis que PONSOYE réalisait les premières expériences de croissance induite par une contrainte uniaxiale dans du tungstène [15], reprises depuis par LETEURTRE et al. [16].

C'est dans ce contexte que nous avons abordé cette étude. La plupart des mesures étaient jusque là discontinues. Il importait d'avoir des mesures continues de longueur, et particulièrement à faibles taux de combustion. En travaillant à basses températures on augmentait la sensibilité des mesures et surtout on pouvait espérer distinguer l'effet des défauts ponctuels - jusque là négligé - de celui des boucles (la présence de défauts ponctuels en début d'irradiation a été montrée par mesure de résistivité électrique [17] [18]). Il importait également de savoir si la croissance subsistait lorsque la température devenait telle qu'aucun défaut n'est mobile (4,2 K).

Nous montrerons qu'à basse température pas plus qu'à température ordinaire la croissance n'est initialement linéaire avec le taux de combustion ; qu'elle n'est pas, à 4,6 K, affectée par la vitesse de fission. Nous dégagerons l'effet des défauts ponctuels de celui des boucles. Enfin, par un modèle simple de montée des boucles dans les pointes de fission, nous rendrons compte de la forme des courbes de croissance.

Chapitre I

TECHNIQUES EXPERIMENTALES

I. 1 - DISPOSITIFS D'IRRADIATION.

I. 1. 1 - Les irradiations à température ordinaire ($\approx 40^{\circ}\text{C}$) ont été faites dans la pile-piscine TRITON de Fontenay-aux-Roses.

Le dispositif utilisé est constitué simplement d'un tube coudé en aluminium de 7 mètres de long et de 50 mm de diamètre ("Chaussette" de forme classique : figure 1). Sa position par rapport au coeur peut varier, ce qui permet d'explorer des flux allant de 10^{10} à 10^{13} nth/cm².s.

Un couvercle muni d'un passage étanche permet de maintenir une pression d'hélium de 1 à 2 atmosphères, afin d'augmenter les échanges thermiques entre l'échantillon et l'eau de la piscine.

Le porte échantillon ou capsule est guidé au fond de la chaussette par un tube capillaire en acier inoxydable ($\varnothing : 2,6 \times 3$) à travers le passage étanche du couvercle. Ce capillaire contient les fils de connection pour des mesures électriques sous flux.

Une boîte de raccordement étanche permet de faire la jonction électrique entre l'échantillon et le laboratoire (50 m de ligne). Cette boîte est fixée sur une roue située au-dessus de la chaussette, et autour de laquelle on peut enrouler le capillaire pour faciliter les défournements et enfournements.

I. 1. 2 - Irradiations dans l'azote liquide.

Nous avons utilisé le dispositif de la pile EL₂ à Saclay, décrit par ailleurs [5a], où nous disposions d'un flux de 10^{12} nth/cm².s.

Nous avons également irradié dans la boucle à 77 K du Service du Plutonium dans le réacteur TRITON. Cette boucle, du même type que celles construites au C.E.N. -G., possédait une jauge capacitive régulatrice du

niveau liquide. Cette particularité mise au point par R.R. CONTE et J. DURAL, améliorerait le fonctionnement de la boucle. Le flux dont on pouvait disposer était de $4,5 \cdot 10^{12}$ nth/cm². s.

I. 1. 3 - Irradiation dans l'hydrogène liquide.

La plupart de nos expériences ont été réalisées à l'aide de la boucle d'irradiation à 20 K du Service du Plutonium de Fontenay-aux-Roses (réacteur TRITON). Ce dispositif a déjà été décrit en détail par R.R. CONTE [19, 20, 21, 22]. Nous n'en rappellerons ici que les caractéristiques principales.

I. 1. 3. 1 - Boucle à 20 K (figure 1).

- Un cryogénérateur Philips PEH-100, dans lequel de l'hélium gazeux est comprimé puis détendu suivant un cycle de Stirling, permet le refroidissement d'un premier étage à 80 K avec une puissance de 250 Watts, et un deuxième étage à 20 K avec une puissance de 100 Watts.

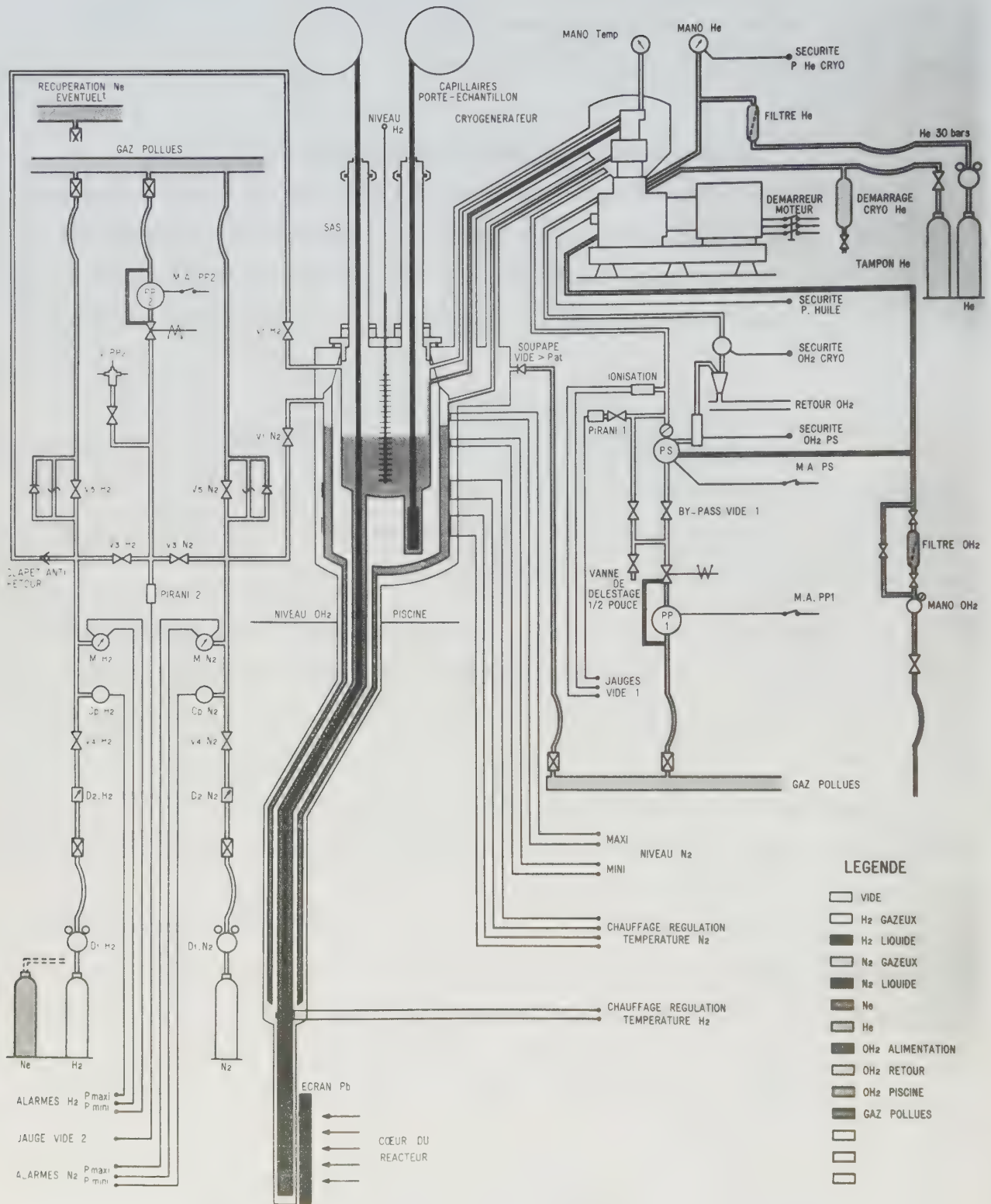
- Le cryostat se compose d'un circuit hydrogène en contact thermique avec le deuxième étage. L'hydrogène liquéfié coule jusque dans le coeur au fond de la boucle ; les vapeurs remontent jusqu'au cryogénérateur par un deuxième tube. Le cycle est ainsi fermé.

De l'azote est liquéfié en circuit fermé, de la même manière grâce au premier étage. Ce circuit d'azote liquide forme écran autour des deux tubes H₂.

Un groupe de pompage raccordé au cryogénérateur permet d'isoler l'ensemble des deux circuits par un vide commun. Des résistances chauffantes placées dans le circuit azote (partie supérieure) et dans le circuit hydrogène (partie inférieure du tube retour-gaz) permettent une régulation de la pression au-dessus des deux bains liquides. Ainsi la température de H₂ liquide est stabilisée à $\pm 0,05$ K.

Les pertes du cryostat, dues aux pertes propres et au chauffage gamma, sont évaluées à 70 Watts, ce qui laisse une puissance disponible de 30 Watts à 20 K. Pour un chauffage γ de l'ordre de 0,8 à 1 Watt/g, le poids du porte échantillon devra être inférieur à 40 g.

- L'ensemble cryogénérateur-cryostat repose sur un chariot XY,



qui permet des déplacements par rapport au coeur du réacteur. On explore ainsi une gamme de flux allant de $3-4 \cdot 10^{11}$ nth/cm².s à $1,3 \cdot 10^{13}$ nth/cm².s.

Les défournements et enfournements sont simplifiés par l'utilisation du capillaire et de sa roue déjà cités.

I. 1.3.2 - Enregistrements des données expérimentales.

Une chaîne d'acquisition de données (Hewlett-Packard) est associée à la boucle 20 K. Cette chaîne comprend [23] :

- une horloge numérique,
- un sélecteur qui permet l'exploration de 25 voies. Il peut être déclenché manuellement ou automatiquement par l'horloge,
- un voltmètre numérique (V.M.N.),
- un amplificateur, à grande impédance d'entrée ($10^{10} \Omega$), utilisé avec un gain 1 ou 10 suivant que l'on désire une sensibilité de 1 ou 0,1 volts sur le voltmètre,
- un transcodeur, qui transforme les données de l'horloge et du voltmètre. On peut ainsi enregistrer les données sur une imprimante (HP 562 AR) ou une télécype à perforatrice de bande pour le traitement des résultats, par ordinateur. La précision des tensions affichées sur le voltmètre est de $3 \cdot 10^{-4}$.

I. 1.4 - Irradiations dans l'hélium liquide (4,6 K).

Nous avons utilisé le dispositif d'irradiation sous hélium liquide, de la Technische Hochschule de Munich à Garching. Ce dispositif, décrit par ailleurs [24, 25] a les caractéristiques principales suivantes : un liquéfacteur de forte puissance produit 270 litres/heure d'hélium liquide, ce qui correspond à une puissance de 170 Watts à 4,6 K. La boucle est constituée d'un tube coudé, superisolé. Un cryostat de mesures, à la partie supérieure de la boucle, permet d'effectuer des recuits après irradiation. Le réacteur est une pile-piscine. Par le déplacement de la boucle, le flux instantané Φ peut varier de $3 \cdot 10^{11}$ à $1,5 \cdot 10^{13}$ nth/cm².s.

I. 2 - MESURES DES TEMPERATURES.

Pour les irradiations à 4, 6 K et 20 K, nous avons utilisé des thermocouples cuivre-constantan non étalonnés. Nous nous sommes servi cependant, d'une courbe d'étalonnage $T(K) = f [U_{\text{ét}} (\text{volts})]$ [26, 27]. A une température de référence (Ex. : 20,4 K pour l'hydrogène liquide à la pression atmosphérique) le thermocouple utilisé donne une tension U. Nous traçons alors une courbe $T(K) = f(U)$ translatée de la courbe d'étalonnage d'une valeur $U - U_{\text{ét}}$.

La référence à 0°C est obtenue par une cellule à point triple de l'eau qui donne + 0,01°C à quelques 10^{-4} degrés près pendant une longue période.

Bien que le pouvoir thermoélectrique du Cu-constantan soit faible aux très basses températures, le voltmètre VMN est suffisamment sensible pour donner une précision de l'ordre de 0,1 K.

D'autre part une irradiation de l'ordre de 10^{18} nth/cm² ne modifie pas la courbe $T(K) = f(U)$. (Pour cette dose $\Delta U < 0,1 \mu \text{ volt}$ [28]).

I. 3 - MESURE DU TAUX DE COMBUSTION τ .

I. 3. 1 - Calcul de τ .

Si l'on désigne par :

- σ_{f5} : la section efficace de fission de l'uranium 235 pour des neutrons à la vitesse la plus probable V_o (2200 m/sec)
- $\bar{\sigma}_{f5}$ et $\bar{\sigma}_{f8}$: la section efficace de fission de ^{235}U et ^{238}U pour une vitesse moyenne $\bar{V}_m$ des neutrons.
- Σf : la section efficace macroscopique de U naturel.
- Φ : le flux instantané de neutrons thermiques (nth/cm². s).
- t : le temps d'irradiation.
- φ : le nombre de fissions par cm³.
- τ : le taux de combustion ($\tau = \frac{\text{nombre d'atomes fendus}}{\text{nombre total d'atomes}}$)

nous avons les relations suivantes :

$$\bar{\sigma}_{f5} = \sigma_{f5} \cdot \frac{\bar{V}_m}{V_o} \times 0,97 \quad (1.1)$$

où le facteur 0,97 est l'écart de σ_{f5} par rapport à la variation en $\frac{1}{V}$ et

$$\frac{V_o}{V_m} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} = 1,128.$$

$$\Sigma_f = N \bar{\sigma}_{f8} \quad (1.2)$$

$$\varphi = \Sigma_f \Phi t = N \bar{\sigma}_{f8} \Phi t \quad (1.3)$$

$$\tau = \frac{\varphi}{N} = \bar{\sigma}_{f8} \Phi t. \quad (1.4)$$

Passons à l'application numérique pour l'uranium naturel que nous avons exclusivement utilisé.

$$\sigma_{f5} = 580 \text{ barns} = 580 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

la relation (1) donne :

$$\bar{\sigma}_{f5} = 500 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$$

la proportion isotopique de ^{235}U dans l'uranium naturel est $\frac{1}{140}$.

Alors

$$\bar{\sigma}_{f8} = \frac{500}{140} \cdot 10^{-24} = 3,57 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

Si l'on prend pour densité de l'uranium $18,7 \text{ g/cm}^3$ on trouve :

$$N = \frac{6,023 \cdot 10^{23} \times 18,7}{238} \simeq 4,8 \cdot 10^{22} \text{ at/cm}^3.$$

$$\Sigma_f = 3,57 \cdot 10^{-24} \times 4,8 \cdot 10^{22} = 0,171 \text{ cm}^{-1}$$

$$\varphi = \Sigma_f \Phi t = \tau N = 0,171 \Phi t \text{ fissions/cm}^3 \quad (1.5)$$

$$\tau = \bar{\sigma}_{f8} \Phi t = 3,57 \cdot 10^{-24} \Phi t \quad (1.6)$$

(Par exemple : $\tau = 10^{-6}$ pour $\Phi t = 2,8 \cdot 10^{17} \text{ nth/cm}^2$).

1.3.2 - Mesure du flux instantané Φ .

Une première méthode consiste à joindre aux échantillons d'uranium, un moniteur à base de cobalt. On mesure ensuite le rayonnement β de ^{60}Co . On en déduit le flux intégré Φt , qu'il suffit de diviser par le temps d'irradiation t . La période de ^{60}Co est de $5,24 \pm 0,02 \text{ ans}$ [29] soit $16,5 \cdot 10^7 \text{ secondes}$.

La constante radioactive λ est alors :

$$\lambda = \frac{\text{Log } 2}{T} = \frac{0,693}{16,5 \cdot 10^7} = 4,2 \cdot 10^{-9} \text{ sec}^{-1}$$

le nombre d'atomes par gramme de cobalt est :

$$N = \frac{6,023 \cdot 10^{23}}{59} \approx 1,02 \cdot 10^{22} \text{ g}^{-1}$$

Si l'on prend $38 \pm 0,7$ barns comme section efficace du cobalt [30], pour la vitesse la plus probable des neutrons, on trouve $33,7 \pm 0,6$ barns pour une vitesse moyenne (1940 m/sec). Le nombre d'atomes actifs par gramme est :

$$N \text{ actifs/g} = N \sigma \Phi t = 34,37 \cdot 10^{-2} \Phi t.$$

L'activité étant $A = \lambda N \text{ actifs}$, nous aurons :

$$A/g = 1,44 \cdot 10^{-9} \Phi t (\text{sec}^{-1})$$

comme 1 millicurie = $3,7 \cdot 10^7 \text{ sec}^{-1}$

$$A \text{ mCi/g} = 3,9 \cdot 10^{-17} \Phi t. \quad (1.7)$$

Finalement :

$$\Phi t = 2,56 \cdot 10^{16} \frac{A}{m}$$

où A est l'activité en microcurie et m le poids du cobalt en milligramme.

L'erreur sur Φ est :

$$\frac{d\Phi}{\Phi} = \frac{dt}{t} + \frac{dA}{A} + \left(\frac{dA}{A} \right)_{\text{comptage}} + \frac{dm}{m}$$

$$\frac{dA}{A} = \frac{d\lambda}{\lambda} + \frac{d\sigma}{\sigma} = \frac{dT}{T} + \frac{d\sigma}{\sigma}.$$

L'erreur sur le poids et le temps est négligeable. La section efficace est connue à 1,8% près, la période à 0,4% près.

$$\frac{d\Phi}{\Phi} = 2,2 \cdot 10^{-2} + \left(\frac{dA}{A} \right)_{\text{comptage}}.$$

L'activité est mesurée soit au laboratoire de mesures des Radioéléments de Saclay, soit par nos soins en la comparant avec l'activité de sources étalons. Les erreurs de comptage sont de l'ordre de 3%. Le flux instantané est alors connu à 5% près.

La 2ème méthode, beaucoup plus rapide consiste à employer un "collectron" ou "Neutrocoax Sodern" [31]. Le collectron est constitué d'une âme

d'argent qui subit la réaction (n, β) dans un flux de neutrons thermiques.

Une gaine métallique séparée du fil émetteur par un isolant (alumine frittée) joue le rôle de collecteur d'électrons. Il se crée sous irradiation un courant entre l'âme et la gaine, proportionnel au flux de neutrons. On mesure ce courant aux bornes d'une résistance de $1\text{ M}\Omega$.

Un étalonnage, dans un flux connu par dosage d'un moniteur de cobalt, donne $1,125\text{ mv}$ pour $10^{11}\text{ nth/cm}^2\cdot\text{s}$. Soit :

$$\Phi\text{ (n/cm}^2\cdot\text{s)} = \frac{10^{11}}{1,125} \cdot X\text{ (mV)} \pm 5\% \quad (1.8)$$

La précision est celle du flux d'étalonnage.

Un tel collectron est ainsi fixé à demeure sur la boucle à 20 K . Nous avons également utilisé cette méthode pour les irradiations à $4,6\text{ K}$.

I.4 - MESURES DES VARIATIONS DE LONGUEUR ($\Delta L/L$).

I.4.1 - Mesures optiques.

La méthode de mesure de longueurs utilisée au début de cette étude, est décrite ailleurs [32]. Le principe en est simple. Il suffit de mesurer, avant et après irradiation, la longueur de fils d'uranium, à l'aide d'un micro-comparateur à deux lunettes. Un tel appareil donne une sensibilité de 3 microns . Il a pu être adapté à des mesures dans l'azote liquide.

Si L est voisin de $6 \cdot 10^4\text{ microns}$, l'erreur sur $\Delta L/L$ est :

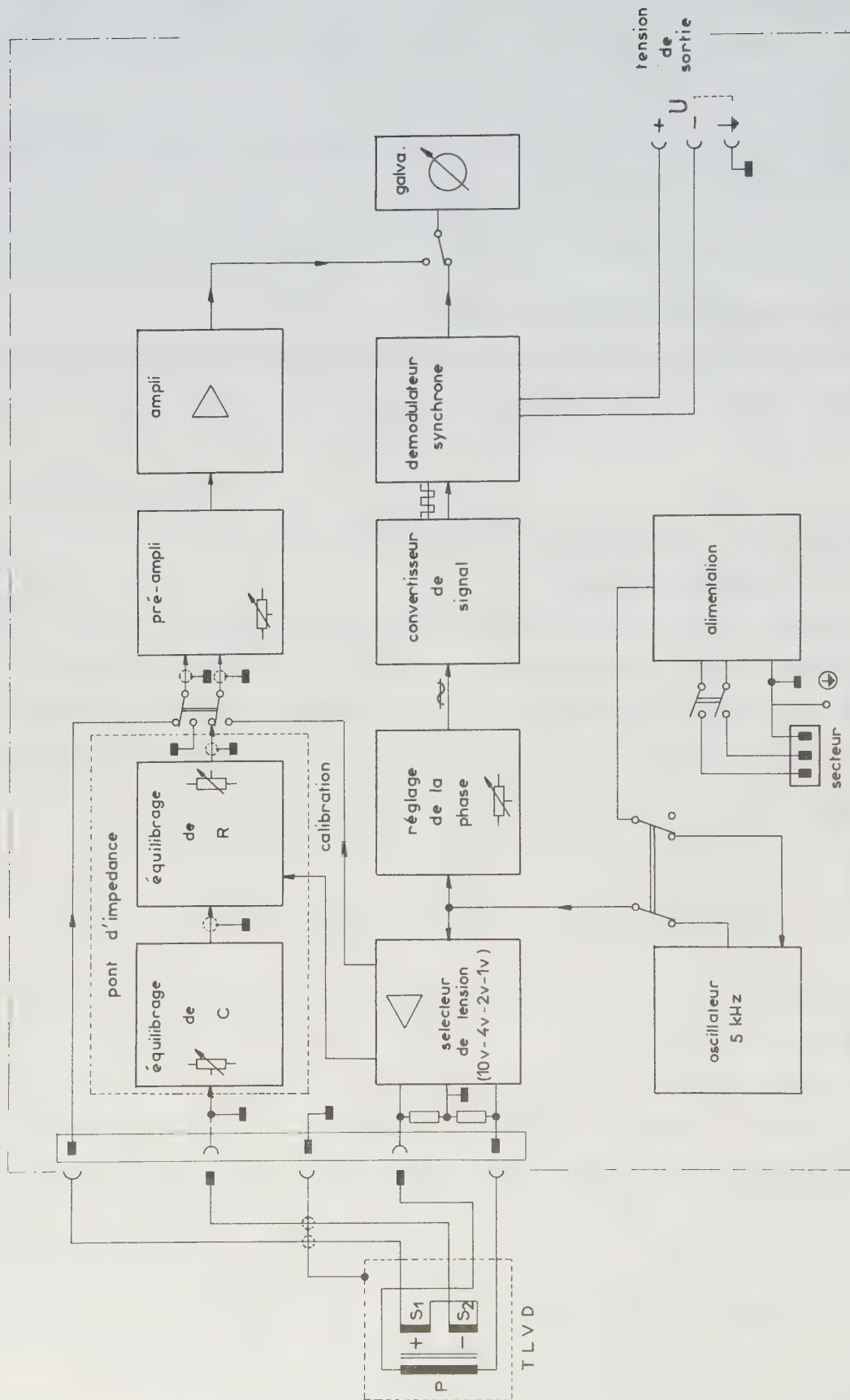
$$\frac{d(\Delta L/L)}{(\Delta L/L)} \simeq \frac{d(\Delta L)}{(\Delta L)} \simeq \frac{6}{\Delta L} \quad (\Delta L \text{ en microns})$$

Il faut donc mesurer des variations de longueur supérieures à 60 microns pour avoir une erreur inférieure à 10% .

Avec cette méthode, on ne peut donc pas explorer le domaine des très faibles doses. (Ex. : $\tau < 10^{-7}$). De plus, la méthode est essentiellement discontinue. Aussi avons nous, par la suite, utilisé des mesures électriques faites sous flux.

I.4.2 - Mesures électriques.

Ces mesures sont décrites en détail ailleurs [31]. Nous n'en rappellerons ici que les points essentiels.



PR 9307

Figure 2 - Schéma de l'alimentation du pont de mesure de longueur (PR 9307 Philips).

I.4.2.1 - Principe.

Le principe repose sur l'utilisation de transformateurs linéaires variables différentiels (T L V D ou capteurs). Cette méthode classique dans son principe [33], doit être appliquée avec certaines précautions d'étalonnage.

Le primaire du T L V D est alimenté en courant alternatif (1 volt - 5 000 Hz). La tension aux bornes du secondaire est amplifiée et redressée. La figure 2 montre le schéma de l'alimentation et du pont de mesure. Si on déplace un noyau magnétique d'une distance ΔL dans le capteur, la variation de tension secondaire sera ΔU telle que :

$$\Delta L = K \Delta U \quad (1.9)$$

où U est une tension continue redressée et K une constante (pente d'étalonnage) caractéristique de chaque capteur et qui dépend de la température.

I.4.2.2 - Capsule d'irradiation.

Le porte échantillon ou capsule (figure 3) se présente sous la forme d'un cylindre creux en aluminium de 10 cm de longueur et 13 mm de diamètre. Le fil à mesurer ($\phi = 0,2$ mm) est maintenu rectiligne dans l'axe de la capsule par un tube d'alumine très fin (ϕ int. = 0,3 mm). La partie supérieure de l'échantillon est fixée sur une vis de réglage (pas de 0,5 mm) par l'intermédiaire d'une douille. Quand la vis de réglage est bloquée, cette extrémité du fil est fixe par rapport au corps de la capsule. L'extrémité inférieure du fil supporte le noyau magnétique*, qui ainsi suspendu, est libre de se déplacer dans le T L V D placé au fond de la capsule. La figure 3 montre également où sont soudées les prises de potentiel et les amenées de courant pour la mesure de résistivité de l'échantillon.

Des fenêtres dans le corps de la capsule permettent le raccordement des liaisons électriques. Ces fils de liaison électrique sortent par la tête de la capsule dans un tube soudé ($\phi = 2,6 \times 3$) qui n'est autre que le capillaire d'acier inoxydable décrit précédemment (I.1.1) et qui s'enroule sur une roue située à la partie supérieure de la boucle d'irradiation.

I.4.2.3 - Etalonnage.

L'étalonnage consiste à déplacer le noyau d'une distance ΔL connue, à lire la tension correspondante ΔU , ce qui donne la valeur de K

* Le poids du noyau (0,5 g) produit une contrainte (20 g/mm^2) qui est négligeable.

CROISSANCE SOUS FLUX A 20 K

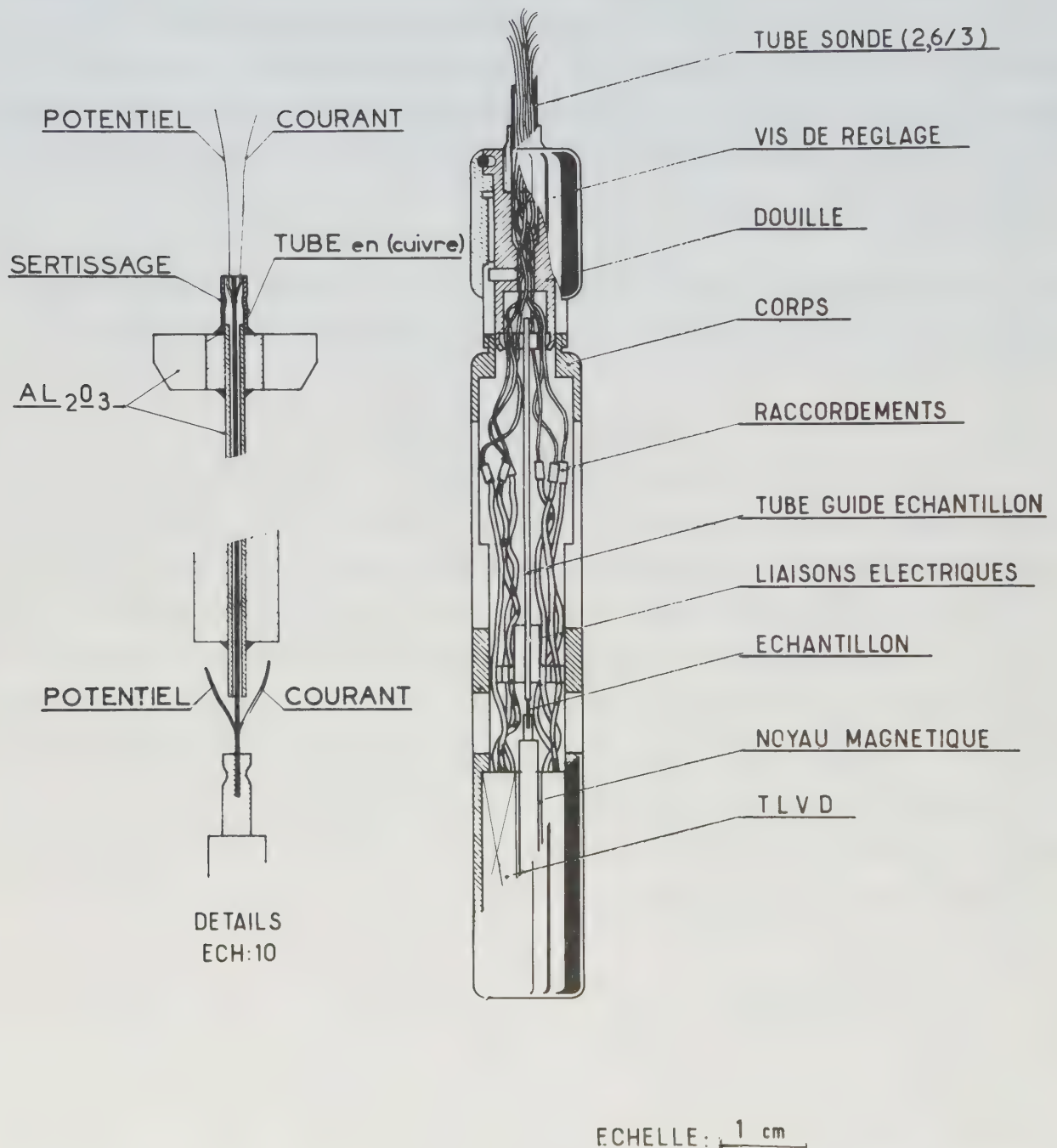


Figure 3 : Capsule porte-échantillon, pour les mesures simultanées de longueur et de résistivité d'un fil d'uranium sous irradiation à très basse température

$$K = \frac{\Delta L}{\Delta U} .$$

L'influence de la résistance de ligne, de la température sur le facteur K nous oblige à certaines précautions. Sans entrer dans les détails, nous dirons qu'il faut étalonner le capteur dans des conditions les plus proches possibles de celles de l'irradiation.

Ainsi une fois la capsule montée au bout du capillaire, nous effectuons les réglages de l'alimentation. Il s'agit de trouver le zéro mécanique du capteur (position du noyau qui donne $U = 0$) et le zéro électrique à l'aide d'un pont d'équilibrage (PR 9307 Philipps). Puis à l'aide de la vis de réglage on déplace le noyau de 1 mm (2 tours de vis) et l'on ajuste la tension secondaire à l'aide d'un potentiomètre de gain, de telle sorte que $U = 1$ volt. (La course linéaire du noyau est de ± 1 mm de part et d'autre de la position 0). Pour $\Delta L = 1$ mm on a donc $\Delta U = 1$ volt, d'où :

$$K = 1 \quad \mu/mV.$$

Toutes ces opérations sont effectuées à température ordinaire. On fixe alors le noyau dans une certaine position. On descend la capsule dans la boucle (boucle à 20 K par exemple), à l'aide du tube sonde, jusqu'à 1,5 mètre au-dessus du coeur du réacteur, la capsule doit être hors flux mais près de sa position d'irradiation. On lit alors une tension secondaire U_{20} . Puis la capsule est sortie de la boucle, on tourne la vis de réglage de 1 tour par exemple ($\Delta L = 500$ microns). La capsule reprend sa position dans la boucle. On note alors U'_{20} . Ainsi on aura la pente d'étalonnage à 20 K.

$$K' = \frac{\Delta L}{\Delta U_{20}} = \frac{500}{U_{20} - U'_{20}} . \quad \mu/mV.$$

A 20 K on a presque toujours $1,10 < K' < 1,3 \quad \mu/mV$. Plusieurs mesures montrent que K (ou K') est défini à 5% près. L'erreur sur le déplacement du noyau (ΔL) est prépondérante.

I. 4. 2. 4 - Erreurs sur la mesure de $\Delta L/L$.

L'erreur sur la variation relative de longueur de l'échantillon sera :

$$\frac{d(\Delta L/L)}{(\Delta L/L)} = \frac{d(\Delta L)}{\Delta L} + \frac{dL}{L}$$

$\frac{dL}{L}$ est de l'ordre de 1%.

$$\frac{d(\Delta L)}{\Delta L} = \frac{dK}{K} + \frac{d(\Delta U)}{\Delta U} \quad \text{avec} \quad \frac{dK}{K} = 5\%$$

Les variations de température, et les fluctuations du voltmètre donnent $dU = \pm 0,05$ mv. Soit $d(\Delta U) = \pm 0,1$ mv. $d(\Delta U)$ représente la dispersion des mesures autour de la courbe $\Delta L/L(\tau)$. On peut dire que l'on mesure des variations de longueur à 0,1 micron près. En réalité la précision de $\Delta L/L$ est influencée par l'erreur systématique sur K.

$$\frac{d(\Delta L/L)}{\Delta L/L} = 1\% + 5\% + \frac{0,1}{\Delta U(\text{mv})}$$

Pour $\Delta U > 10$ mV, soit $\Delta L \gg 10$ microns. (K' est voisin de 1 μ/mV) on a une précision constante de 6%.

1.4.2.5 - Méthode de recuits isochrones.

Le dispositif, permettant d'effectuer des recuits isochrones après irradiation à 20 K, est inspiré de celui décrit par CONTE et al. [34].

Après l'étalonnage, on place une résistance chauffante autour de la capsule. L'ensemble est placé dans une tube étanche en acier inoxydable ($\phi = 15$ mm). Les contacts thermiques entre cette enveloppe et la capsule doivent être évités. Par le tube sonde, on peut faire le vide dans cette enveloppe en contact avec l'hydrogène liquide. En chauffant on fait varier la température de l'échantillon qui est donnée par un thermocouple placé sur la gaine en alumine.

Une sonde de platine, dans la capsule, est reliée à un ensemble de régulation (Cryogenic Research, modèle TC 101 - puissance 100 watts). La température est régulée à quelques 1/10e de degré près.

Après irradiation on réchauffe l'échantillon à différentes températures pendant un temps constant (10 min.). La mesure, correspondant à une température, est faite à 20 K. On obtient ainsi des courbes $\frac{\Delta L}{\Delta L_0}(T \text{ K})$ et $\frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_0}(T \text{ K})$ où ΔL_0 et $\Delta \rho_0$, sont les accroissements de longueur et de résistivité à 20 K juste après irradiation. On peut également, avant irradiation, tracer les courbes $\rho(T \text{ K})$ et $U(T \text{ K})$ pour une position donnée du noyau. Cela donne la possibilité d'effectuer des corrections si la température varie brusquement

(lors d'un changement de flux par exemple).

Pendant l'irradiation, on remplace le vide par l'atmosphère gazeuse qui règne dans le circuit - hydrogène de la boucle. Cependant, les échanges thermiques, entre la capsule et l'hydrogène liquide, sont imparfaits si bien que la puissance dissipée par irradiation γ (chauffage γ) n'est pas complètement éliminée. La température de l'échantillon sera donc toujours supérieure à 20 K, et mesurée avec un thermocouple placé sur sa gaine d'alumine.

Remarque :

Pour les recuits après irradiation à 4,6 K, nous avons utilisé le cryostat prévu à cet usage, sur la partie supérieure de la boucle. Pour éviter les effets de trempe de l'uranium [35], nous avons fait des courbes ρ (T K) et U (T K) avant et après irradiation. Par différences on obtient les courbes $\frac{\Delta L}{\Delta L_0}$ (T K) et $\frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_0}$ (T K).

I. 5 - MESURES DE RESISTIVITE ELECTRIQUE.

Nous avons fait des mesures de résistivité, uniquement à basses températures. Ce sont des résistances et des variations de résistance que l'on mesure en fait.

I. 5. 1 - Méthode.

On utilise la méthode dite "des 4 fils" (deux amenées de courant et deux prises de potentiel). Un courant constant i , stable à 10^{-5} , parcourt l'échantillon de résistance R_x et une résistance étalon R_E , montées en série. On mesure les tensions aux bornes de R_x et R_E , à l'aide du voltmètre V M N dont l'impédance d'entrée est très grande ($10^{10} \Omega$). Ainsi le débit de courant est pratiquement nul ($\approx 10^{-13}$ A) dans les prises de potentiel et le voltmètre. La résistance de ligne, et la résistance de contact, entre les prises de potentiel et l'échantillon, sont donc négligeables. Les mesures seront pratiquement potentiométriques.

La résistance cherchée est :

$$R_x = \frac{V_x}{V_E} R_E$$

I. 5.2 - Erreurs sur la mesure de R_x .

L'effet thermoélectrique (ϵ), entre les prises de potentiel en cuivre et l'uranium, peut être une cause d'erreur. On l'élimine en inversant le sens du courant. Ce qui donne deux mesures de V_x .

$$\begin{aligned} V_{x1} &= R_x i + \epsilon \\ V_{x2} &= R_x i - \epsilon \end{aligned} \quad \text{soit } R_x = \frac{V_{x1} + V_{x2}}{2 i}$$

On trouve par différence $\epsilon = \frac{V_{x1} - V_{x2}}{2}$. Dans notre cas (cuivre-uranium à basses températures) ϵ est négligeable, on se contentera donc de faire une seule mesure de V_x . Par contre d'autres sources d'erreurs ne sont pas éliminées, comme l'instabilité du voltmètre et de la chaîne d'acquisition, les variations de courant, les fluctuations de températures de l'étalon et de l'échantillon.

Soit :

$$\frac{dR_x}{R_x} = \frac{dV_E}{V_E} + \frac{dV_x}{V_x} + \frac{di}{i} + \frac{dR_E}{R_E} + \left(\frac{dV_x}{V_x} \right)_T (K)$$

La précision du voltmètre est de $3 \cdot 10^{-4}$ comme on l'a vu.

$$\frac{dV_E}{V_E} + \frac{dV_x}{V_x} = 6 \cdot 10^{-4}$$

$$\frac{di}{i} = 10^{-5} \quad \text{et} \quad \frac{dR_E}{R_E} = 10^{-4}$$

Les fluctuations de V_x avec la température sont visibles sur le voltmètre. Par exemple un courant de 30 mA, dans un échantillon d'uranium de résistivité $\rho = 2,6 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm}$ à 20 K, de longueur $L = 46 \text{ mm}$ et de diamètre $d = 180 \text{ microns}$, donne une tension

$$V_x = 1370 \pm 3 \mu \text{ volts}$$

soit

$$\left(\frac{dV_x}{V_x} \right)_T = 2,2 \cdot 10^{-3}$$

Finalement :

$$\frac{dR_x}{R_x} \approx 3 \cdot 10^{-3}$$

I. 5.3 - Calcul de la variation de résistivité $\Delta \rho$.

La résistivité est liée à la résistance, par le facteur de forme $K = \frac{S}{L}$

(S est la section du fil, L sa longueur) tel que $\rho = KR$.

Si un fil d'uranium s'allonge sous irradiation, et, que son diamètre diminue son facteur de forme diminue :

$$\frac{\Delta K}{K} = \frac{\Delta S}{S} + \frac{\Delta L}{L}.$$

Si l'on ne tient pas compte de la variation de section, on a $\frac{\Delta L}{L} = \frac{\Delta K}{K}$.

Soit K_o et K_t les facteurs de forme avant irradiation et à un moment quelconque de l'irradiation correspondant à une variation de longueur ΔL . Nous aurons :

$$\frac{K_o - K_t}{K_o} = \frac{\Delta L}{L}$$

soit : $K_t = K_o \left(1 - \frac{\Delta L}{L} \right).$

R_o et R_t sont les résistances avant et pendant l'irradiation.

$$\Delta \rho = \rho_t - \rho_o = K_o \left[\left(1 - \frac{\Delta L}{L} \right) R_t - R_o \right] \quad (1.10)$$

En tenant compte de la variation de section $\left(\frac{\Delta S}{S} = -\frac{\Delta L}{L} \right)$ car $\frac{\Delta V}{V} = 0$

$$\Delta \rho = K_o \left[\left(1 - 2 \frac{\Delta L}{L} \right) R_t - R_o \right] \quad (1.11)$$

I. 5.4 - Erreurs sur $\Delta \rho$.

L'erreur sur $\Delta \rho$ sera de la forme :

$$\frac{d(\Delta \rho)}{(\Delta \rho)} = \frac{d K_o}{K_o} + \frac{d(R - R_o)}{R - R_o}.$$

L'erreur sur résistance est donnée par

$\frac{d(R - R_o)}{R - R_o} = \frac{d R_x}{R_x} = 3 \cdot 10^{-3}$, c'est une erreur aléatoire qui caractérise la dispersion des mesures autour de la courbe $\Delta \rho(\tau)$. L'erreur relative sur K

s'écrit : $\frac{d K_o}{K_o} = \frac{d L}{L} + \frac{d S}{S} = 6\%$, car on a $\frac{d L}{L} \approx 1\%$ et $\frac{d S}{S} =$

$2 \frac{d D}{D} = 2,5\%$, c'est une erreur systématique, que l'on fait une fois pour toutes en mesurant les dimensions du fil avant irradiation.

L'erreur relative globale sur $\Delta\rho$ est :

$$\frac{d(\Delta\rho)}{\Delta\rho} \approx 6,3 \% .$$

Remarque :

On peut dire, tant pour les mesures de longueur que pour les mesures de résistivité, que la sensibilité est bonne, mais que la précision est moyenne.

I. 6 - LES ECHANTILLONS.

Nous avons utilisé de l'uranium "technique", désigné par UT, contenant environ $5 \cdot 10^{-3}$ impuretés par atome.

I. 6. 1 - Description.

Les échantillons proprement dit, sont des fils polycristallins, d'environ 4 à 6 cm de longueur et de diamètre 0,2 mm. Ces fils sont obtenus par tréfilage avec une réduction en diamètre de 0,8 à 0,2 mm, sans recuit intermédiaire. Les uns UTe sont bruts de tréfilage, donc très écrouis et possèdent une texture $[010]$ moyenne.

Les autres $UT\alpha$ sont obtenus en effectuant un recuit de recristallisation en haut de la phase α de 3h. à 600°C sur les fils écrouis. Ils possèdent ainsi une très forte texture $[010]$.

La figure 4 montre la taille des grains d'un $UT\alpha$.

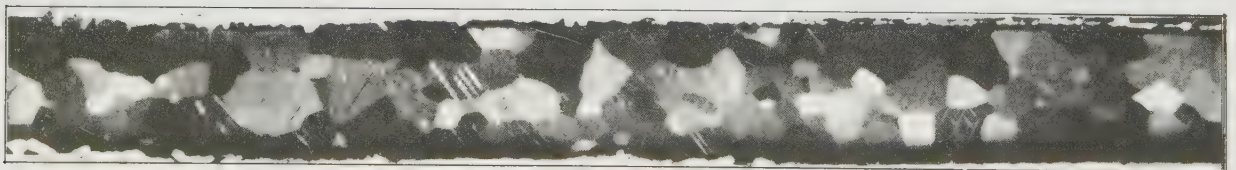


Figure 4 : Micrographie d'un fil $UT\alpha$
(le diamètre du fil est de 200 microns
le diamètre moyen des grains est de 50 microns).

I. 6. 2 - Rôle et détermination de la texture.

La plupart de nos mesures de croissance ont été faites sur des fils polycristallins de texture $[010]$. Nous n'obtenons donc jamais directement le coefficient $G_{[010]}$ mais un coefficient g_{Δ} dans l'axe Δ du fil dépendant manifestement de cette texture.

Pour tirer $G_{[010]}$ de la mesure de g_{Δ} , il nous faut donc évaluer quantitativement cette texture. C'est ce que nous avons fait en mesurant la dilatation thermique λ_{Δ} de nos fils qui elle aussi dépend de la texture. Nous montrons ci-dessous comment on peut relier $G_{[010]}/g_{\Delta}$ et λ_{Δ} .

Prenons un petit grain d'un fil dont les trois axes cristallographiques principaux font les angles A, B et C avec l'axe Δ du fil. Les coefficients de croissance le long de ces trois axes, d'après ce que nous avons vu dans l'introduction, sont :

$$G_{[100]} = -G \qquad G_{[010]} = +G \qquad G_{[001]} = 0.$$

La contribution de ce grain au coefficient de croissance le long de Δ dépend à la fois de G et de la somme $\cos^2 A + \cos^2 B$. Le coefficient global g_{Δ} sera la moyenne de la contribution de tous les grains.

On peut donc écrire : $g_{\Delta} = F_1(G, m)$

où m est un paramètre qui dépend de l'orientation des grains donc de la texture.

On peut écrire une expression analogue pour le coefficient de dilatation thermique : $\lambda_{\Delta} = F_2(\alpha, \beta, \gamma, m)$

où α, β, γ sont les coefficients de dilatation thermique le long des trois axes cristallographiques principaux.

En éliminant m entre ces deux expressions on trouve une relation entre g_{Δ} et λ_{Δ} . Si l'on suppose que la texture $[010]$ a une symétrie de révolution autour de l'axe Δ et que la croissance et la dilatation thermique ne s'accompagnent d'aucune interaction grain à grain, on montre facilement [32] (voir également l'Annexe I) que :

$$\frac{g_{\Delta} - g_2}{g_1} = \frac{\lambda_{\Delta} - \lambda_2}{\lambda_1} \quad (1.12)$$

avec $g_1 = 3/2 G$; $g_2 = -1/2 G$; $\lambda_1 = \beta - 1/2 (\alpha + \gamma)$; $\lambda_2 = 1/2 (\alpha + \gamma)$.

La relation (1.12) peut s'écrire :

$$g = k G \quad (+ G = G_{[010]})$$

où

$$k = \frac{\lambda_{\Delta} - \frac{\alpha+\beta+\gamma}{3}}{\beta - \frac{\alpha+\beta+\gamma}{3}} \text{ est le facteur de texture.}$$

- Pour une orientation isotrope des grains ($g_{\Delta} = 0$) le facteur de texture est nul ($k = 0$ car $G \neq 0$).

- Pour une texture $[010]$ parfaite, avec 100% des axes $[010]$ des grains dans la direction Δ , λ_{Δ} est égal à β et par conséquent $k = 1$.

BUCKLEY [36] a trouvé expérimentalement une courbe $g_{\Delta} = f(\lambda_{\Delta})$ en "S" qui s'enroule autour de notre droite, avec des écarts au plus de 20% (figure 30).

Les mesures de dilatométrie que nous avons faites entre 25°C et 150°C ont donné en moyenne les résultats suivants :

$$\begin{array}{ll} \text{pour UT}\alpha & \lambda_{\Delta} = (2 \pm 4) 10^{-7}/d^{\circ} \\ \text{pour UTe} & \lambda_{\Delta} = (6 \pm 0,4) 10^{-6}/d^{\circ} \end{array}$$

En prenant pour α , β et γ entre 25°C et 150°C, les valeurs données par la formule de LLOYD [37].

$$\alpha = 26,18.10^{-6}/d^{\circ} \quad \beta = -0,81.10^{-6}/d^{\circ} \quad \gamma = 23,24.10^{-6}/d^{\circ}.$$

On trouve :

$$\begin{array}{ll} k = 0,94 \pm 0,02 & \text{pour UT}\alpha \\ k = 0,6 \pm 0,03 & \text{pour UTe} \end{array}$$

On voit donc que UT α a une texture $[010]$ plus prononcée que UTe.

Remarque :

Le pourcentage y des grains ayant leur axe $[010]$ dans l'axe Δ du fil dépend du facteur de texture k . On peut avoir une idée de y en supposant comme BUCKLEY la proportionnalité entre y et k .

On écrit alors $y = A k + B$.

Pour une texture isotrope, un tiers des axes $[010]$ des grains sont parallèles à l'axe Δ , on a donc $y = 33,3\%$ alors que $k = 0$. Pour une texture $[010]$ parfaite, la totalité des axes $[010]$ sont parallèles à Δ on a donc $y = 100\%$ et $k = 1$. Ces conditions définissent A et B.

En remplaçant k par son expression en fonction de λ_{Δ} on peut écrire :

$$y\% = 96,82 - 3,91 (\lambda_{\Delta} \cdot 10^6).$$

G.F. SLATTERY et al. ont utilisé une relation analogue [38] :

$y\% = 105,8 - 5 (\lambda \Delta 10^6)$, qui cependant n'est pas très correcte puisque pour $\lambda \Delta = \beta$ (β est négatif) on trouve $y > 100\%$. On peut caractériser la texture par d'autres paramètres, par exemple en prenant une répartition gaussienne des axes [010] autour de Δ [32].

I. 6. 3 - Choix des dimensions de l'échantillon.

I. 6. 3. 1 - Choix de la longueur.

Les fils doivent être grands, pour que l'allongement soit suffisamment important, compte tenu de la précision des mesures, surtout dans le cas des mesures optiques. Mais ils ne doivent pas être trop longs pour que le flux de neutrons qui les traverse soit homogène. En prenant des longueurs de 4 à 6 cm, tout l'échantillon peut être placé dans la partie plate du gradient de flux des réacteurs ($\frac{d\Phi}{dH}$ où H est la hauteur de l'échantillon par rapport au coeur). Avec de telles longueurs on réalise un bon compromis.

I. 6. 3. 2 - Choix du diamètre.

La longueur étant fixée, il faudra prendre un diamètre assez petit, pour que la masse de l'échantillon n'entraîne pas une trop grande activité après irradiation, pour les mesures en laboratoire (cas des mesures optiques). Un fil de 60 mm de long et de 0,2 mm de diamètre irradié par 10^{17} nth/cm² donne environ 100 mR/h.

Mais le principal avantage, d'un petit diamètre, est que la différence de température ΔT , entre le coeur de l'échantillon et sa surface extérieure, est faible. Un calcul rapide peut donner un ordre de grandeur pour ΔT .

Si on écrit l'équation de la conductibilité thermique des solides, dans le cas d'un cylindre de longueur L grande devant le rayon r - de sorte que la surface de la section droite soit négligeable devant la surface d'échange latérale - on a :

$$q = - K \frac{dT}{dr}$$

où q est le flux de chaleur qui traverse la surface latérale, K est la conductibilité thermique et T la température. Soit h_0 l'énergie dissipée par cm³ d'échantillon. La chaleur totale dégagée sera $h_0 L \pi r^2$.

$$q = \frac{h_o L \pi r^2}{2 \pi r L} = \frac{1}{2} h_o r$$

et
$$\frac{1}{2} h_o r dr = - K dT$$

$$\frac{1}{2} h_o \int_0^r r dr = \int_{T_1}^{T_2} K dT$$

où T_2 est la température à coeur et T_1 la température en surface.

En intégrant

$$\frac{h_o}{4} r^2 = \int_{T_1}^{T_2} K dT$$

Pour l'uranium $K = c^{te} = 0,18$ Watts/cm/d° entre 20 K et 40 K [39]. Dans le cas d'un fil ($r = 0,1$ mm) irradié dans l'hydrogène liquide,

$$T_2 - T_1 = \frac{h_o 10^{-4}}{4 \times 0,18}$$

Le nombre de fissions par cm^3 et par seconde, correspondant à un flux $\Phi = 10^{12}$ n/cm².s, est :

$$4,8 \cdot 10^{22} \times 3,57 \cdot 10^{-24} \times 10^{12} = 1,7 \cdot 10^{11} \text{ fissions/cm}^3$$

Une fission dégage une énergie de 200 MeV, soit :

$$2 \cdot 10^8 \text{ eV} \times 1,6 \cdot 10^{-19} = 3,2 \cdot 10^{-11} \text{ Joules}$$

$$h_o = 3,2 \cdot 10^{-11} \times 1,7 \cdot 10^{11} \approx 5 \text{ Watts/cm}^3$$

On trouve

$$T_2 - T_1 = \frac{5}{4 \times 0,18} \cdot 10^{-4} \approx 7 \cdot 10^{-4} \text{ K}$$

On peut donc considérer $T_2 = T_1$.

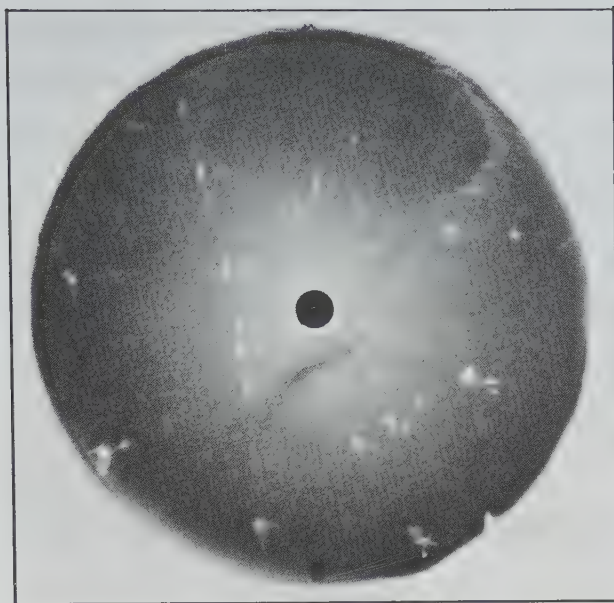
D'autre part la différence de température (ΔT)' entre l'échantillon et le milieu ambiant dépend de la chaleur W dégagée par unité de surface.

On a :

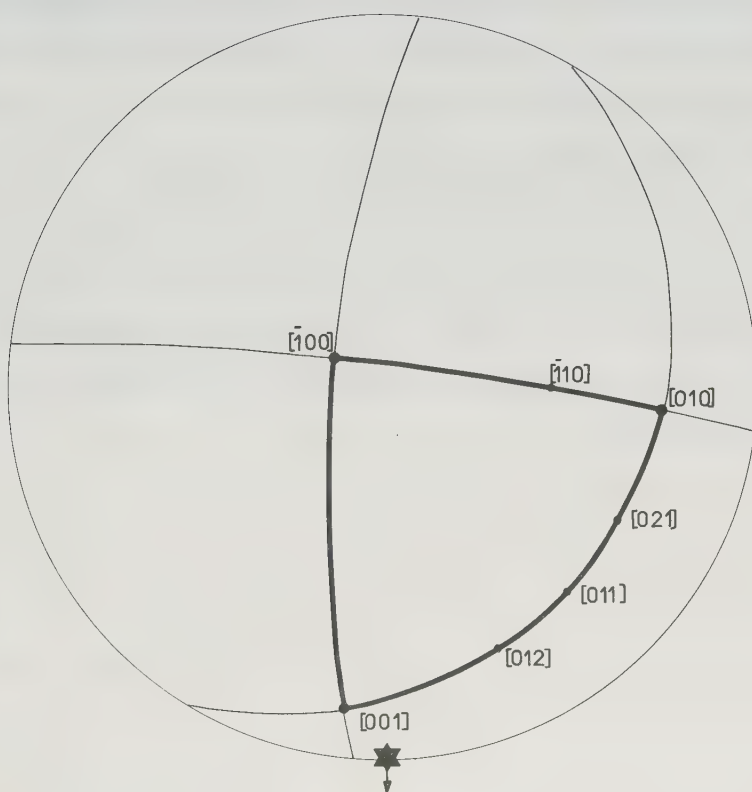
$$h_o \cdot \pi r^2 \cdot L = W \cdot 2\pi \cdot r \cdot L$$

d'où
$$W = \frac{1}{2} h_o r = 2,5 \cdot 10^{-2} \text{ Watts/cm}^2.$$

On trouve des courbes théoriques et expérimentales [40] dans le cas de l'hydrogène liquide et de l'hélium liquide, pour $W = 2,5 \cdot 10^{-2}$ Watts/cm², qui



5a



5b

Figure 5 : Cliché de Laue (5a) et projection stéréographique (5b) d'un monocristal, dont l'axe c est très près de l'axe de l'échantillon représenté par l'étoile.

donnent $(\Delta T)' \approx 0,3$ K. Ce qui est en bon accord avec les résultats expérimentaux de QUERE [18] qui trouve $(\Delta T)' = 0,5$ K par mesure de résistivité dans l'azote liquide (77 K). Nous n'avons pas étudié le cas où l'échantillon est séparé du bain liquide par une lame de gaz froid (cas des expériences dans l'hydrogène liquide). On considérera cependant la température du thermocouple comme étant celle de l'échantillon pourvu qu'ils soient suffisamment près l'un de l'autre. Les valeurs de la résistivité tout au début de l'irradiation, ou en fin d'irradiation, comparées aux valeurs à 20 K, justifient cette évaluation de la température.

I. 6. 4 - Monocristal.

Nous avons également irradié un monocristal d'uranium ⁽¹⁾, sous forme de plaquette (longueur : 14 mm , largeur : 1,8 mm , épaisseur : 0,82 mm). Le dépouillement du diagramme de Laue (figure 5) montre que l'axe c ([001]) est très près de l'axe longitudinal de la plaquette. L'axe c est dans un plan qui fait un angle de 7° avec le plan de la plaque ; le plan perpendiculaire à la plaquette et passant par l'axe de celle-ci, coupe le plan de l'axe c le long d'une droite qui fait un angle de 7° avec l'axe c.

Les calculs montrent que l'on doit avoir ici $\Delta T = 1,5$ K entre le coeur de l'échantillon et le bain d'hydrogène liquide. Ici encore le monocristal est dans du gaz ; de plus nous n'avons pas pu placer le thermocouple suffisamment près. Nous montrerons plus loin comment nous avons estimé la température d'irradiation de ce monocristal (voir page 50).

⁽¹⁾ Ce monocristal nous a été gracieusement fourni par le laboratoire de M. le Professeur LACOMBE.

Chapitre II

RESULTATS EXPERIMENTAUX

II. 1 - MESURES OPTIQUES.

La longueur des fils d'uranium (60 mm environ) est mesurée simplement à température ordinaire, avant et après irradiation à l'aide d'un microcomparateur optique. Les courbes $\Delta L/L (\tau)$ sont donc obtenues point par point. Chaque point correspond à l'irradiation d'un échantillon. Ceci explique la dispersion des résultats.

II. 1. 1 - Irradiations à température ordinaire.

Un fil $UT\alpha$, un fil UTe et un moniteur d'aluminium à 1% de cobalt, sont placés dans une ampoule de silice scellée sous 300 g d'hélium gazeux. Chaque ampoule est placée au centre d'un conteneur cylindrique en aluminium ($L = 90$ mm $\varnothing = 16$ mm). Les conteneurs sont percés de trous, pour faciliter les échanges thermiques entre les échantillons et l'eau de la piscine du réacteur TRITON.

On peut estimer la température des échantillons, comme étant celle du milieu ambiant, c'est-à-dire $40^\circ C$. Les conteneurs sont placés dans un panier classique et irradiés un par un dans un flux de $2,7 \cdot 10^{12}$ nth/cm². s mais pendant des temps différents.

- Résultats :

- $UT\alpha$: la figure 6 montre la variation de $\Delta L/L$ avec le taux de combustion τ . Par exemple pour $\tau = 5,21 \cdot 10^{-6}$ on a $\frac{\Delta L}{L} = 1,17 \cdot 10^{-3}$ ce qui correspond à $\Delta L = 72$ microns.

La courbe $\Delta L/L (\tau)$ peut être considérée comme linéaire pour $\tau > 10^{-6}$, mais présente une courbure négative en début d'irradiation. La croissance est donc plus importante aux faibles taux de combustion.

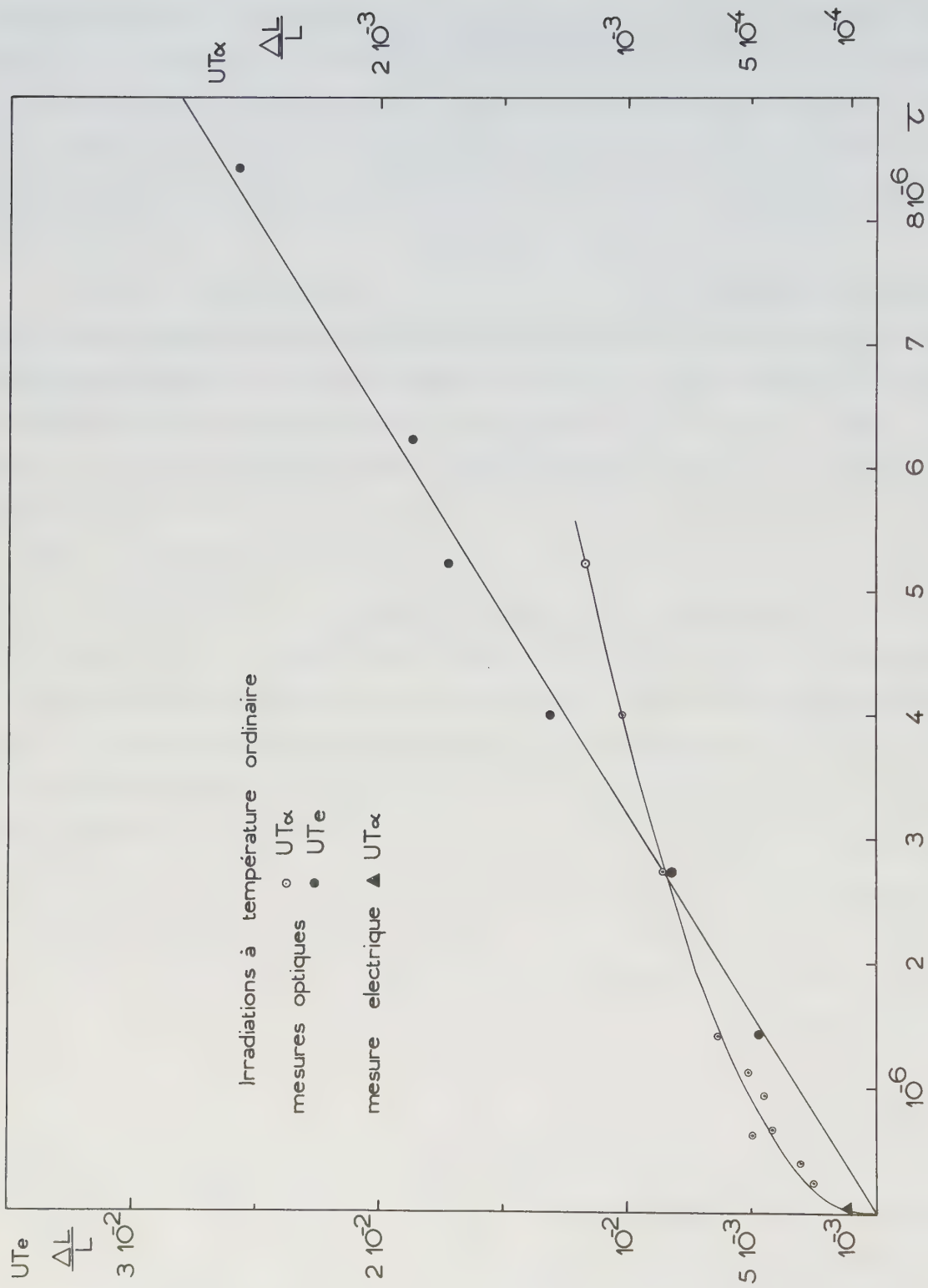


Figure 6 - Variation de longueur en fonction du taux d'irradiation ($\Delta L/L(\tau)$) pour UTα et UTe irradiés à température ordinaire (mesures optiques).

UTe : On voit également sur la figure 6 que la variation de longueur $\Delta L/L$ est proportionnelle aux taux de combustion τ , dès le début de l'irradiation, pour l'uranium écroui. Dans ce cas la relation $\Delta L/L = G$ s'applique, et l'on trouve $G = 3125$, en faisant la correction de texture

$$G_{[010]} = 3125 \times 1,7 \simeq 5300$$

On remarque également que la croissance est plus marquée que pour $UT\alpha$, du moins pour τ suffisamment grand. Ici avec $\tau = 5,21 \cdot 10^{-6}$ l'accroissement relatif de longueur est $\Delta L/L = 1,72 \cdot 10^{-2}$ soit $\Delta L = 1048 \mu$ ce qui représente plus d'un ordre de grandeur de différence.

II. 1.2 - Irradiation dans l'azote liquide (77 K).

Ces expériences ont été effectuées dans les deux dispositifs cités au chapitre I. 1.2 ($EL_2 \phi = 10^{12}$ nth/cm². s et TRITON $\phi = 4,5 \cdot 10^{12}$ nth/cm². s).

Un fil $UT\alpha$, un fil UTe et un moniteur au cobalt, sont placés dans un petit tube d'aluminium pincé à chaque extrémité. Ce tube est percé de trous, afin que les échantillons baignent dans l'azote liquide.

La forte croissance de l'uranium à basse température nous a permis d'irradier à des doses plus faibles qu'à température ordinaire, compte tenu de la sensibilité des mesures.

La figure 7 montre les variations de longueur en fonction de τ . On peut décomposer ces variations en deux parties linéaires, bien que les résultats soient très dispersés, surtout dans le cas de $UT\alpha$ car les variations de longueur sont faibles.

- Résultats :

- $UT\alpha$: Une première partie linéaire pour $0 < \tau < 8 \cdot 10^{-8}$ où l'on peut appliquer la relation $\Delta L/L = G\tau$ et qui donne $G = 5500$.

Une deuxième partie linéaire de pente plus faible pour $8 \cdot 10^{-8} < \tau < 1,57 \cdot 10^{-6}$.

- UTe : Le coefficient de croissance correspondant à la première partie linéaire ($0 < \tau < 2,9 \cdot 10^{-7}$) est $G = 10500$. Puis pour $\tau > 2,9 \cdot 10^{-7}$ la variation de $\Delta L/L$ reste linéaire, mais moins prononcée qu'en début d'irradiation.

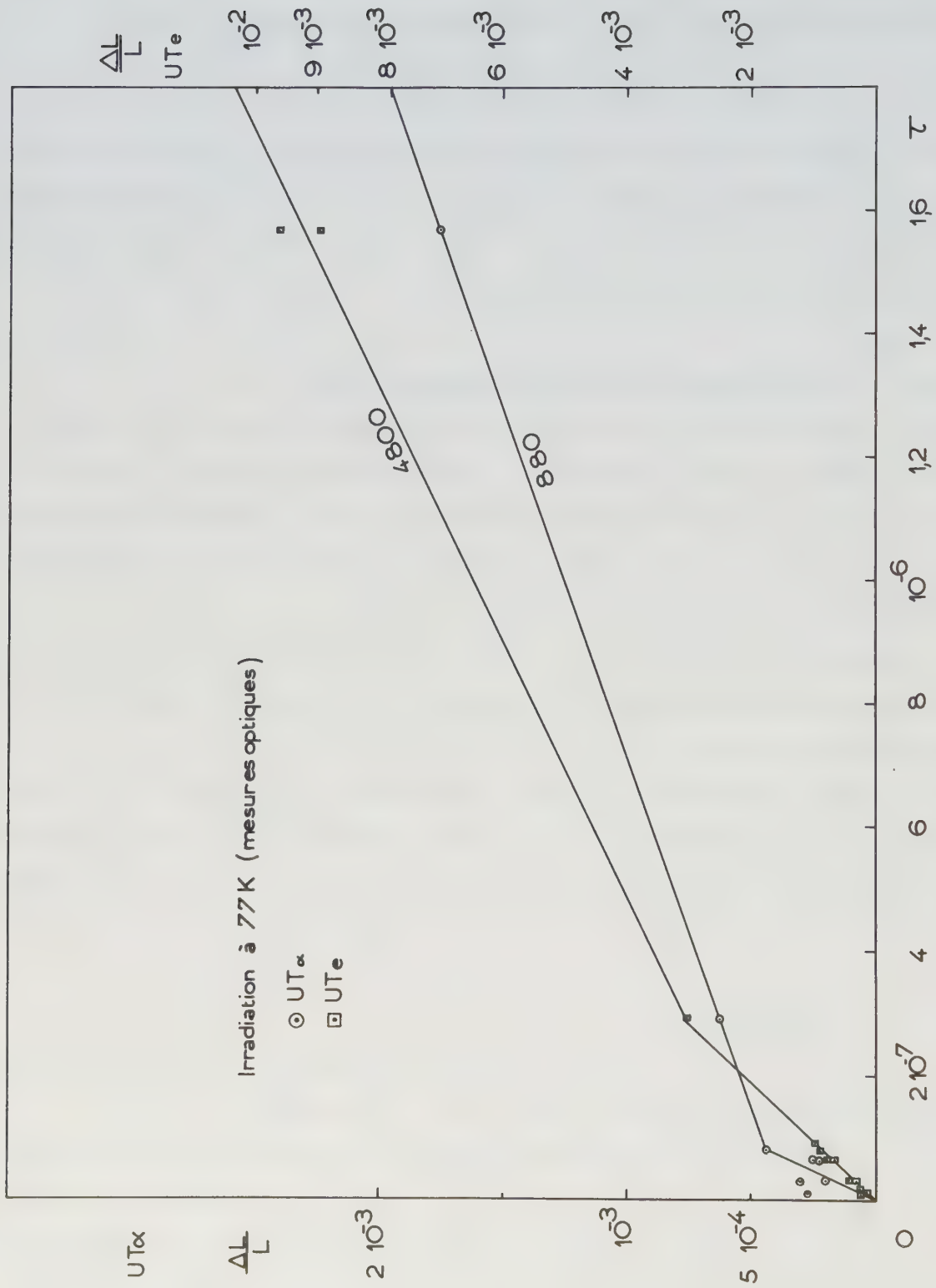


Figure 7 - Courbes $\Delta L/L (\tau)$ pour UT α et UT e irradiés à 77 K (mesures optiques).

A cette température l'uranium écroui croît cinq fois plus que l'uranium recuit.

En effet à $\tau = 1,57 \cdot 10^{-6}$

$$\Delta L/L = 9 \cdot 10^{-3} \quad (\Delta L = 540 \mu) \quad \text{pour UTe}$$

$$\text{et} \quad \Delta L/L = 1,75 \cdot 10^{-3} \quad (\Delta L = 105 \mu) \quad \text{pour UT}\alpha.$$

Tous ces résultats obtenus par mesures optiques nous montrent que G n'est pas constant. Il est donc intéressant de connaître avec plus de précision, la variation de G avec le taux de combustion, surtout en début d'irradiation.

II.2 - MESURES ELECTRIQUES.

Ces mesures électriques très sensibles vont permettre de suivre avec plus de précision, moins de dispersion et une meilleure reproductibilité, la variation de longueur d'un seul échantillon, pendant son irradiation. Il est possible de suivre simultanément la variation de sa résistivité électrique. Les flux seront aussi mesurés électriquement, avec un collectron.

II.2.1 - Irradiation à température ordinaire (40°C).

A cette température seules les mesures de longueur ont pu être effectuées. Cette expérience, devant servir de "test" pour les mesures électriques de longueur, fut concluante, puisqu'elle nous a montré avec précision que la courbe $\Delta L/L (\tau)$ (fig. 8) présentait une courbure négative pour τ très petit, ce que laissaient prévoir les mesures optiques.

Nous avons utilisé un fil UT α de 46,8 mm de longueur. Ainsi sur la courbe, $\Delta L/L = 10^{-5}$ représente une variation de longueur $\Delta L = 0,468$ microns.

Le flux instantané $\Phi = 10^{10}$ nth/cm². s, a été choisi très faible, pour que le phénomène n'évolue pas trop vite et que nous ayons un grand nombre de points dans un petit domaine de taux de combustion.

La figure 8 ne montre que le début de l'irradiation, qui s'est poursuivie jusqu'au point $\tau = 2 \cdot 10^{-8}$ et $\Delta L/L = 1,25 \cdot 10^{-4}$. Ce point, reporté sur la courbe représentant les mesures optiques à température ordinaire de UT α (fig. 6), montre le bon raccordement des mesures.

La forme de la courbe $\Delta L/L (\tau)$ ne permet plus de déduire un coefficient de croissance, tel qu'il a été défini jusqu'à présent, puisque manifestement G varie avec τ . Nous verrons à la fin de ce chapitre, la définition qu'il con-

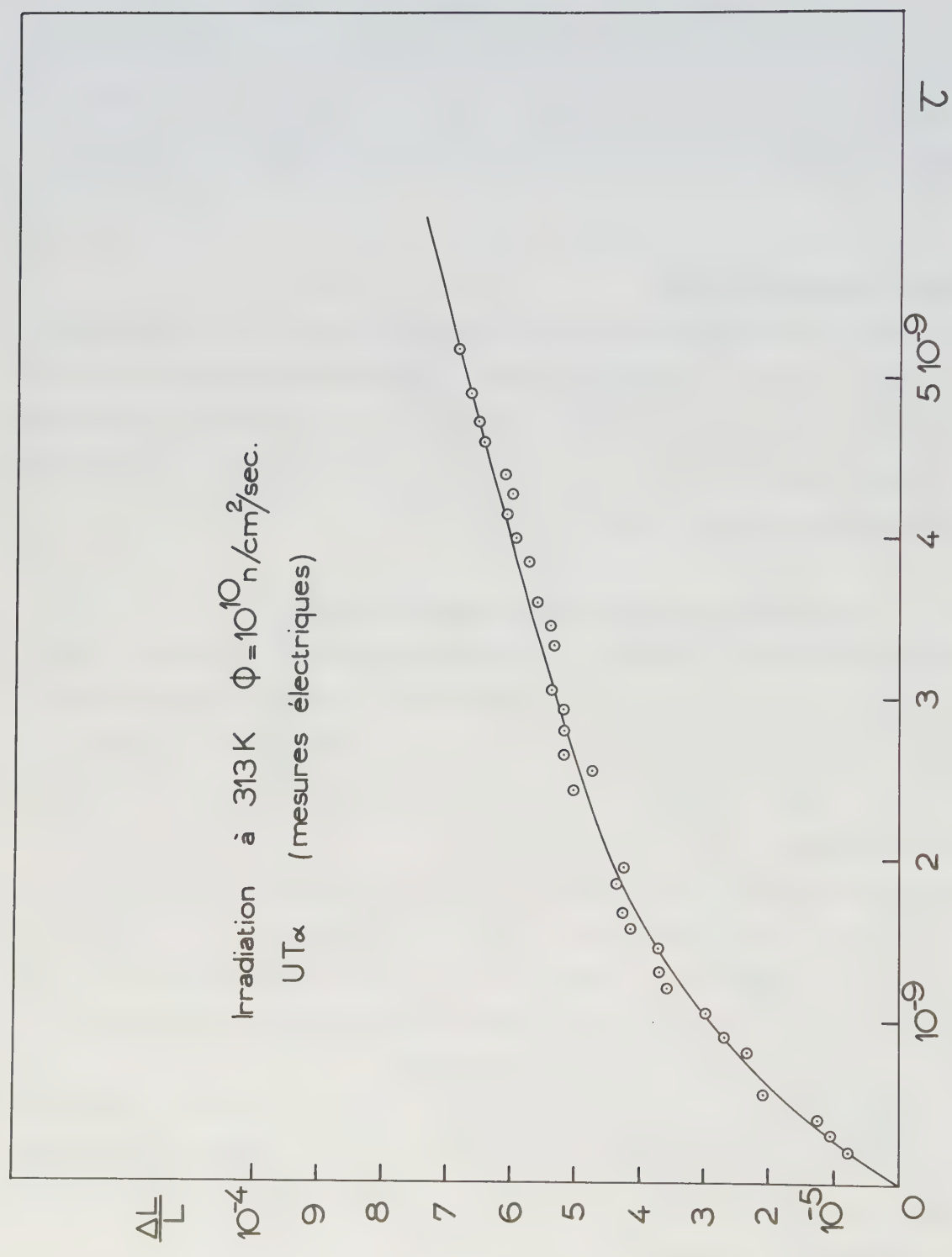


Figure 8 - Courbe $\Delta L/L (\tau)$ pour UT α irradié à température ordinaire et à faibles doses (mesures électriques en flux).

vient d'adopter pour le coefficient de croissance.

Le taux de variation de longueur diminue, c'est-à-dire que le nombre de défauts stockés à chaque fission diminue quand τ augmente. Aux très faibles doses, lorsque les fissions agissent indépendamment les unes des autres, la production de défauts ponctuels isolés ou sous forme de paires de Frenkel n'est certainement pas négligeable ce qui est prouvé par les mesures de résistivité électrique [17]. Plus la migration de ces défauts sera faible, plus la probabilité de leur présence, sera grande. La contribution de ces défauts ponctuels à l'accroissement de longueur, par gonflement, sera donc plus important à basse température.

Nous avons donc fait des irradiations dans l'hydrogène et l'hélium liquides, en mesurant simultanément les variations de longueur et de résistivité électrique.

II. 2. 2 - Irradiations dans l'hydrogène liquide.

Nous avons vu dans le chapitre I. 4. 2. 5 pour quelles raisons la température de la capsule était supérieure au bain liquide à 20 K. Cette température peut varier suivant les expériences et le flux neutronique choisi. En effet, l'importance du flux γ , donc du chauffage γ , dépend de la position de la boucle d'irradiation par rapport au coeur du réacteur.

II. 2. 2. 1 - Augmentation du flux instantané en cours d'irradiation.

Si la température de l'échantillon (T K) varie avec le flux instantané Φ , il n'est pas possible de dégager l'influence de chacun de ces deux paramètres. Cependant pour des raisons d'ordres techniques, nous avons été conduits à modifier le flux Φ en cours d'irradiation. En effet, lorsque l'on descend la capsule au fond de la "boucle 20 K", une partie des fils de liaison, qui était à la température ordinaire, se refroidit, modifiant la tension secondaire du capteur de mesures de longueur. Il faut environ 15 minutes pour atteindre l'équilibre thermique, quand la capsule est au fond de la boucle. Or même en position maximum de recul par rapport au coeur du réacteur, le bas de cette boucle reste dans un flux qui, s'il est faible, n'est pas négligeable ($\simeq 4.10^{11}$ nth/cm².s). L'échantillon est donc irradié à faible flux pendant 30 minutes environ, sa température est de l'ordre de 30 K. Puis la boucle est avancée dans le flux choisi, ce qui a pour effet d'augmenter la température.

Figure 9 - Variations de longueur et de résistivité de $UT\alpha$ irradié dans la boucle 20 K.

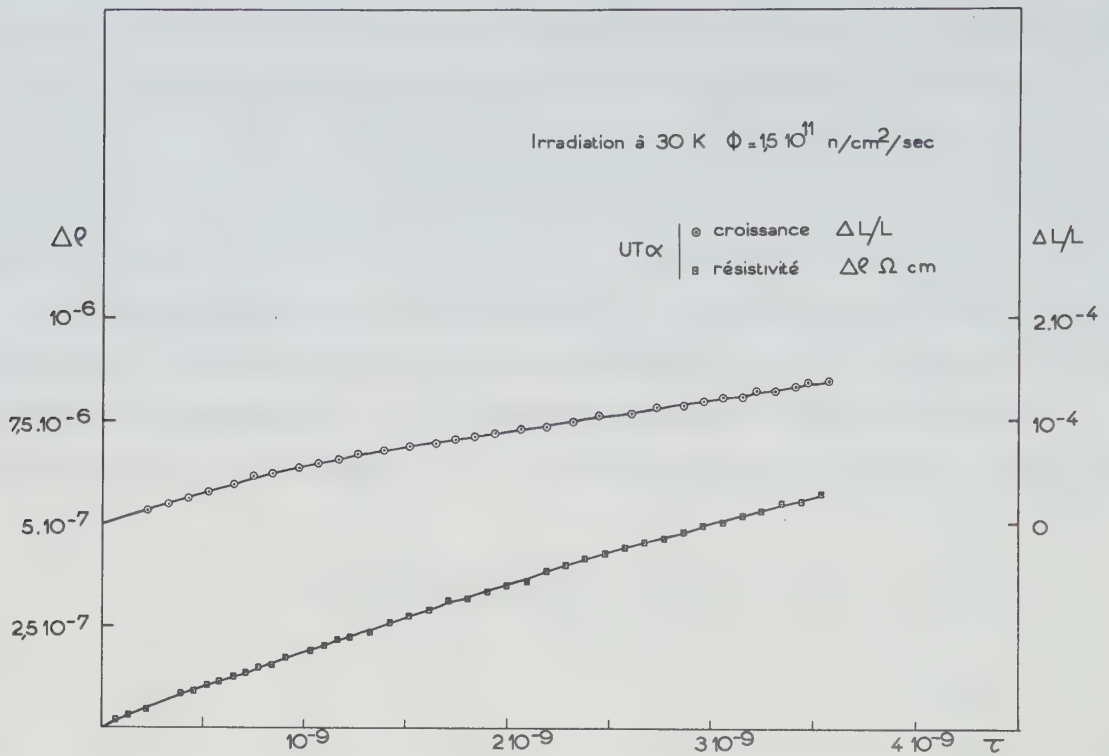


Figure 9a - Courbes $\Delta L/L(\tau)$ et $\Delta \rho(\tau)$ à 30 K pour $0 < \tau < 3,5 \cdot 10^{-9}$.

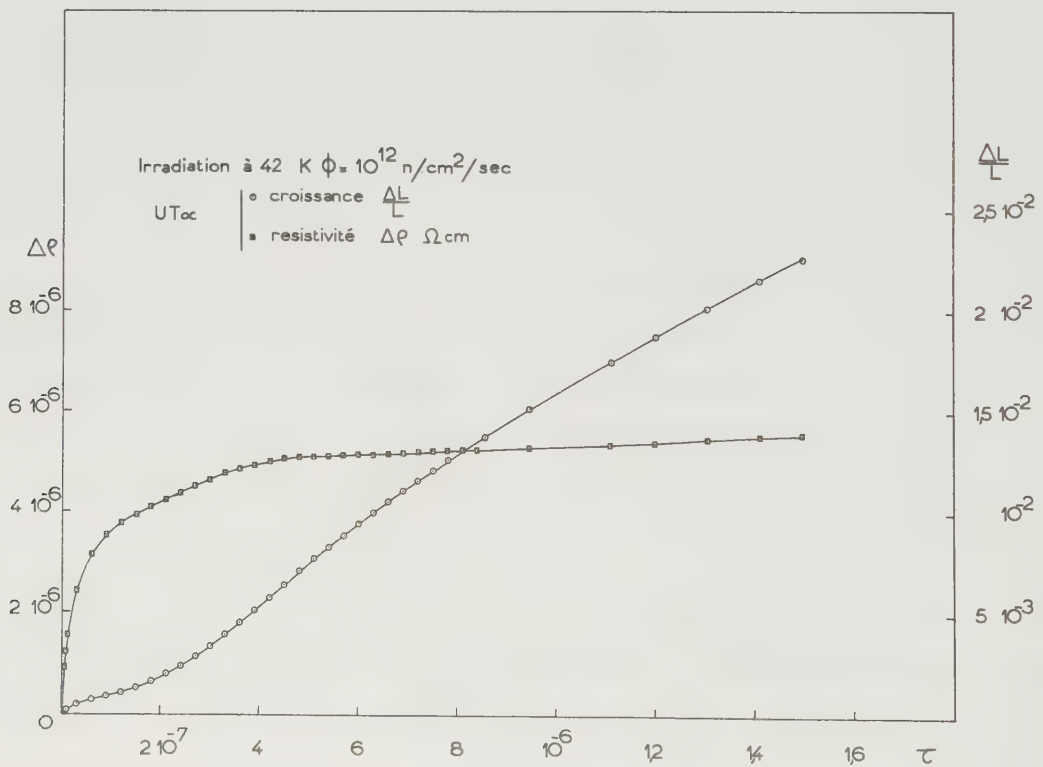


Figure 9b - Courbes $\Delta L/L(\tau)$ et $\Delta \rho(\tau)$ à 42 K pour $3,5 \cdot 10^{-9} < \tau < 1,5 \cdot 10^{-6}$.

Résultats concernant un uranium recuit U α .

Pour cet échantillon :

la longueur initiale est :

$$L_0 = 50,5 \text{ mm.}$$

le facteur de forme est :

$$K = \frac{S}{L} = 5,14 \cdot 10^{-5} \text{ cm.}$$

la résistivité initiale est :

$$\rho = 3,135 \cdot 10^{-6} \Omega_{\text{cm}} \text{ à } 30 \text{ K}$$

$$\rho = 2,455 \cdot 10^{-6} \Omega_{\text{cm}} \text{ à } 20 \text{ K.}$$

La figure 9a montre les variations de longueur et de résistivité obtenues au début d'irradiation ($0 < \tau < 3,5 \cdot 10^{-9}$) à 30 K dans un flux instantané de $1,5 \cdot 10^{11} \text{ nth/cm}^2 \cdot \text{s}$.

L'irradiation s'est poursuivie à 42 K dans un flux de $10^{12} \text{ nth/cm}^2 \cdot \text{s}$. jusqu'à un taux de combustion $\tau = 1,5 \cdot 10^{-6}$. (figure 9b).

Après irradiation :

- la variation totale de longueur est de $1145,3 \mu$ soit un allongement relatif $\frac{\Delta L}{L} = 2,28 \cdot 10^{-2}$.

- la variation totale de résistivité électrique est de :

$$\Delta \rho = 5,56 \cdot 10^{-6} \Omega_{\text{cm}}.$$

On remarque la saturation bien connue de la résistivité pour $\tau_s = 5 \cdot 10^{-7}$ ($\Delta \rho = 5,12 \cdot 10^{-6} \Omega_{\text{cm}}$), et une partie presque linéaire entre $1,2 \cdot 10^{-7}$ et $5 \cdot 10^{-7}$ de taux de combustion.

La courbe $\Delta L/L(\tau)$ présente une courbure négative en début d'irradiation, deux points d'inflexion pour $\tau_1 = 1,2 \cdot 10^{-7}$ et $\tau_2 = 5 \cdot 10^{-7}$. et trois parties linéaires pour

$$- 3 \cdot 10^{-8} < \tau < 1,2 \cdot 10^{-7}$$

$$- 3,5 \cdot 10^{-7} < \tau < 5 \cdot 10^{-7}$$

$$- 1,1 \cdot 10^{-6} < \tau$$

Nous appellerons :

- Faibles doses la partie correspondant à la courbure négative au début d'irradiation.
- Doses intermédiaires l'intervalle de taux de combustion comprenant les deux points d'inflexions qui sont caractéristiques des irradiations à basses températures.

- Fortes doses, l'intervalle de l'irradiation qui correspond à la dernière partie linéaire des courbes $\Delta L/L (\tau)$.

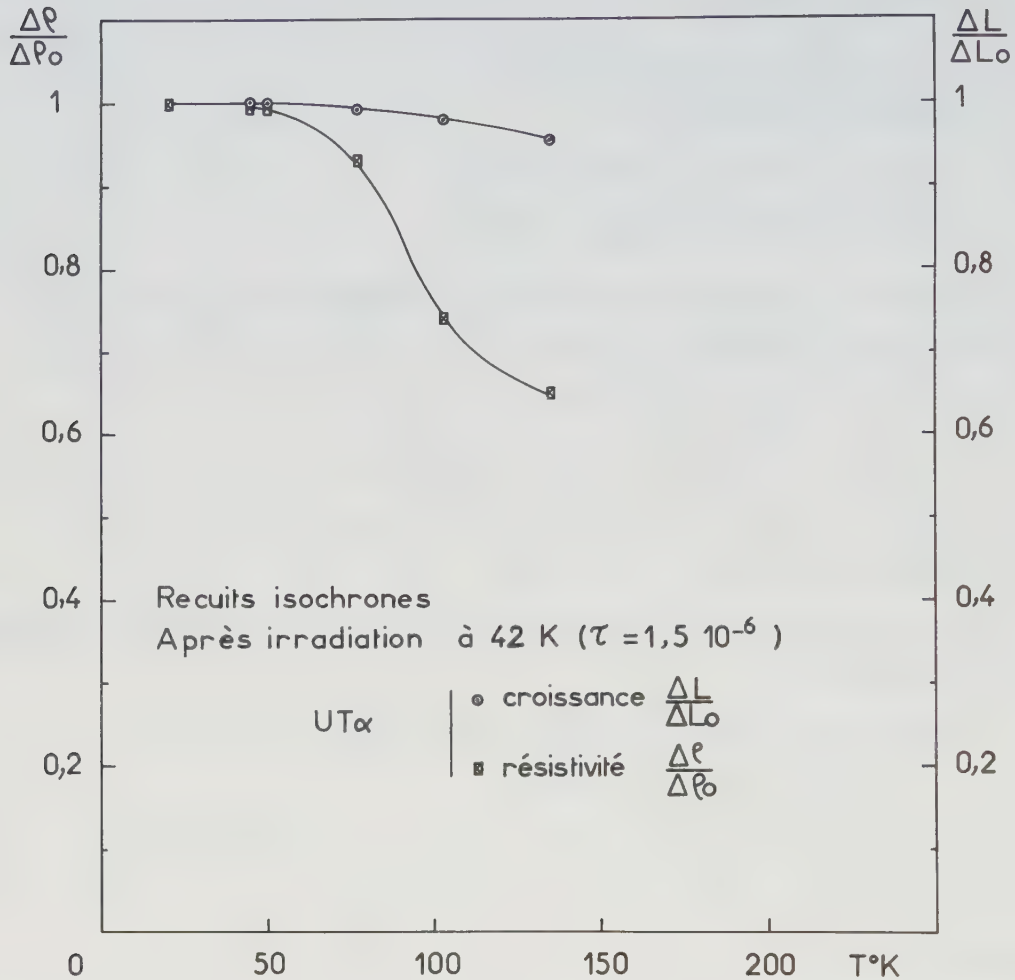


Figure 10 - Recuits isochrones des variations de la longueur et de la résistivité induites par irradiation à 42 K ($\tau = 1,5 \cdot 10^{-6}$).

Après irradiation, nous avons effectué des recuits isochrones de 10 minutes à chaque température de recuit.

Les mesures sont faites à 20 K (fig. 10).

On constate que le recuit de l'accroissement de résistivité commence dès 45 K pour être de 35% à 135 K avec une vitesse de recuit maximum vers 90 K.

Le recuit de l'allongement est moins important. Il ne commence que vers 50 K et augmente régulièrement pour être de 5% à 135 K.

Résultats concernant un uranium écroui UTe.

Pour cet échantillon :

la longueur initiale est :

$$L_0 = 44,5 \text{ mm.}$$

le facteur de forme est :

$$K = \frac{S}{L} = 5,718.10^{-5} \text{ cm}$$

la résistivité électrique initiale est :

$$\rho = 6,74.10^{-6} \Omega \text{ cm à } 34 \text{ K}$$

$$\rho = 7,31.10^{-6} \Omega \text{ cm à } 40 \text{ K.}$$

La figure 11a donne les variations de longueur et de résistivité en fonction du taux de combustion au début d'irradiation ($0 < \tau < 6.10^{-9}$) dans un flux instantané de $4,2.10^{11} \text{ nth/cm}^2 \cdot \text{s}$ à une température de 34 K.

Figure 11 - Variation de longueur et de résistivité de UTe irradié dans la boucle 20 K.

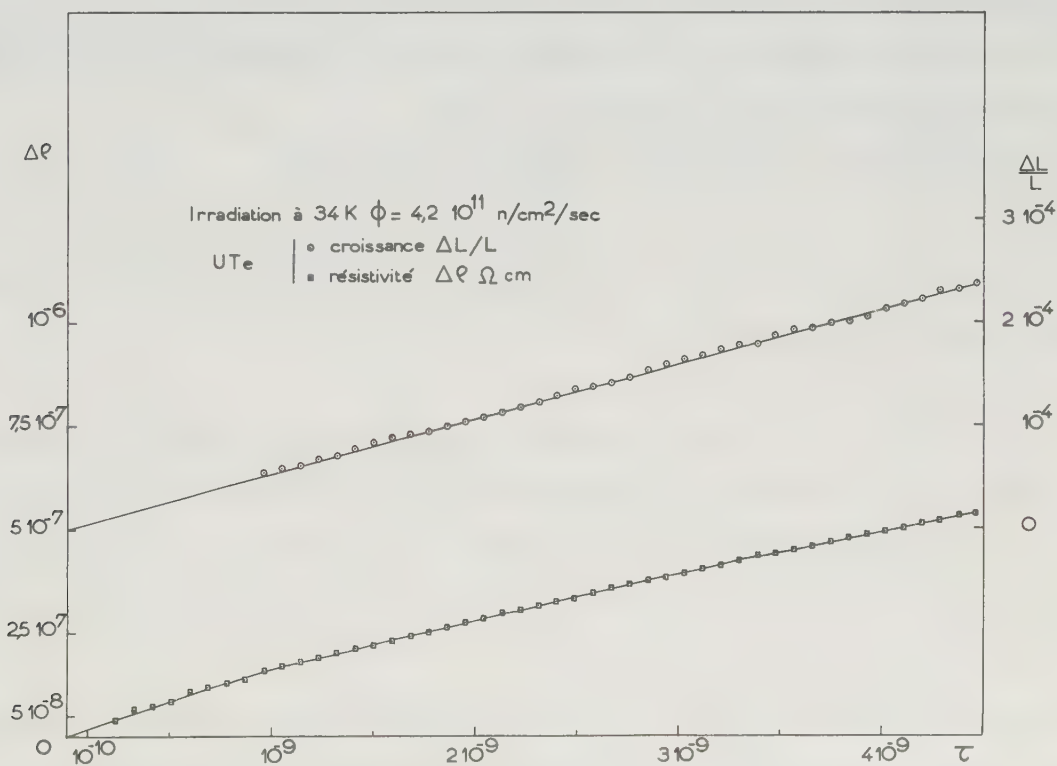


Figure 11a - Courbes $\Delta L/L(\tau)$ et $\Delta \rho(\tau)$ à 34 K pour $0 < \tau < 6.10^{-9}$.

La figure 11b montre la suite de l'irradiation dans un flux instantané de 10^{12} nth/cm².s, à une température de 40 K, jusqu'à un taux de combustion $\tau = 6,13.10^{-7}$.

Après irradiation :

- la variation totale de longueur est de 774,3 microns, ce qui correspond à un allongement relatif $\Delta L/L = 1,74.10^{-2}$,

- l'augmentation totale de résistivité électrique est de :

$$\Delta \rho = 4,78.10^{-6} \Omega \text{cm.}$$

On retrouve la saturation de la résistivité électrique pour $\tau_s = 5.10^{-7}$ après une augmentation de $\Delta \rho = 4,78.10^{-6} \Omega \text{cm.}$ Nous remarquerons qu'à la saturation ($\tau_s = 5.10^{-7}$) l'accroissement de résistivité est plus faible que dans le cas de l'uranium recuit ($5,12.10^{-6} \Omega \text{cm.}$).

Quant à la courbe de variation de longueur $\Delta L/L(\tau)$, elle ne présente qu'un seul point d'inflexion pour $\tau_1 = 1,5.10^{-7}$ et deux parties linéaires

$$1,1.10^{-7} < \tau < 1,5.10^{-7}$$

$$3.10^{-7} < \tau .$$

Cette dernière partie correspond aux fortes doses.

Des recuits isochrones (10 minutes) après irradiation (fig. 12) donnent des courbes analogues à celles obtenues sur UT α .

La diminution de résistivité commence dès 45 K.

A 125 K, le recuit des défauts créés par irradiation entraîne une réduction de 50% de l'accroissement de résistivité $\Delta \rho_0$. La diminution de longueur ne commence qu'à 50 K avec un recuit total de 5% à 125 K.

II. 2. 2. 2 - Flux instantané constant et température constante.

Dans ce cas, la boucle d'irradiation est placée définitivement dans le flux instantané choisi. Dès le début de l'irradiation l'échantillon est à une température de 36 K dans un flux de $7,1.10^{11}$ nth/cm².s. Les mesures de longueur obtenues dans le premier quart d'heure d'irradiation, ne sont pas valables pour les raisons décrites au paragraphe précédent. La valeur initiale de la tension secondaire du capteur, à 36 K est déduite par extrapolation des résultats aux temps $t > 15$ minutes.

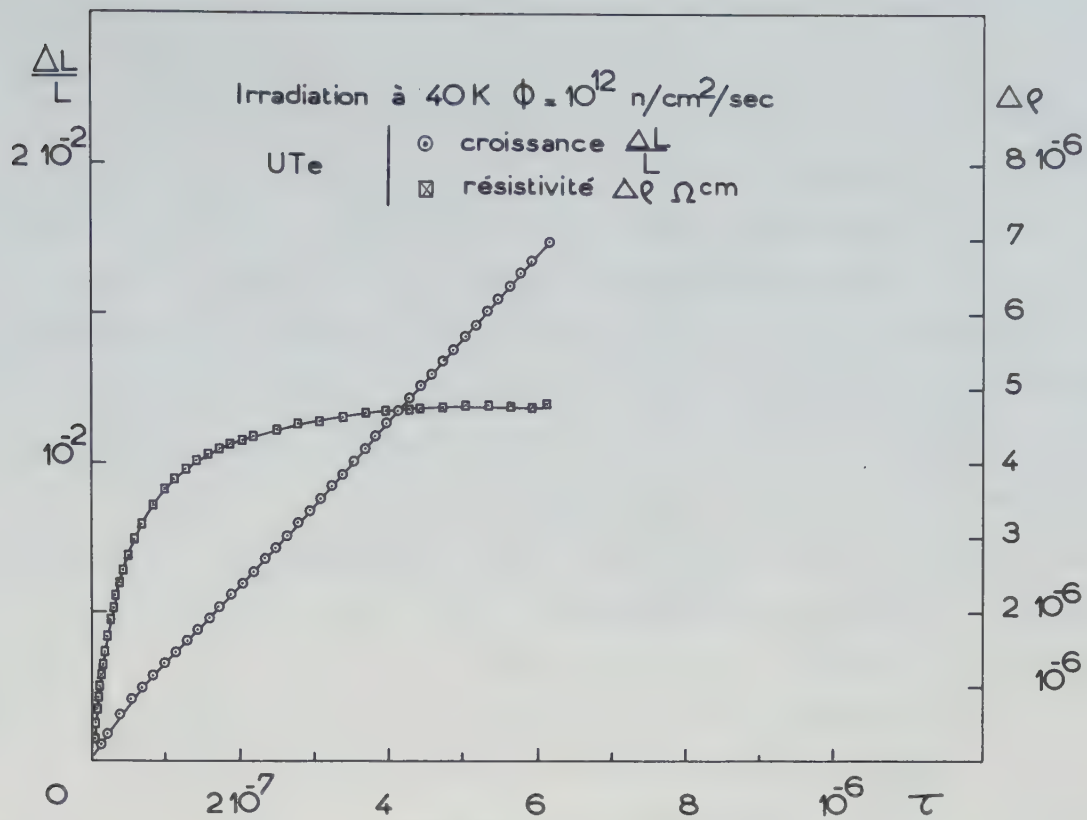


Figure 11b - Courbes $\Delta L/L(\tau)$ et $\Delta \rho(\tau)$ à 40 K pour $6 \cdot 10^{-9} < \tau < 6,1 \cdot 10^{-7}$.

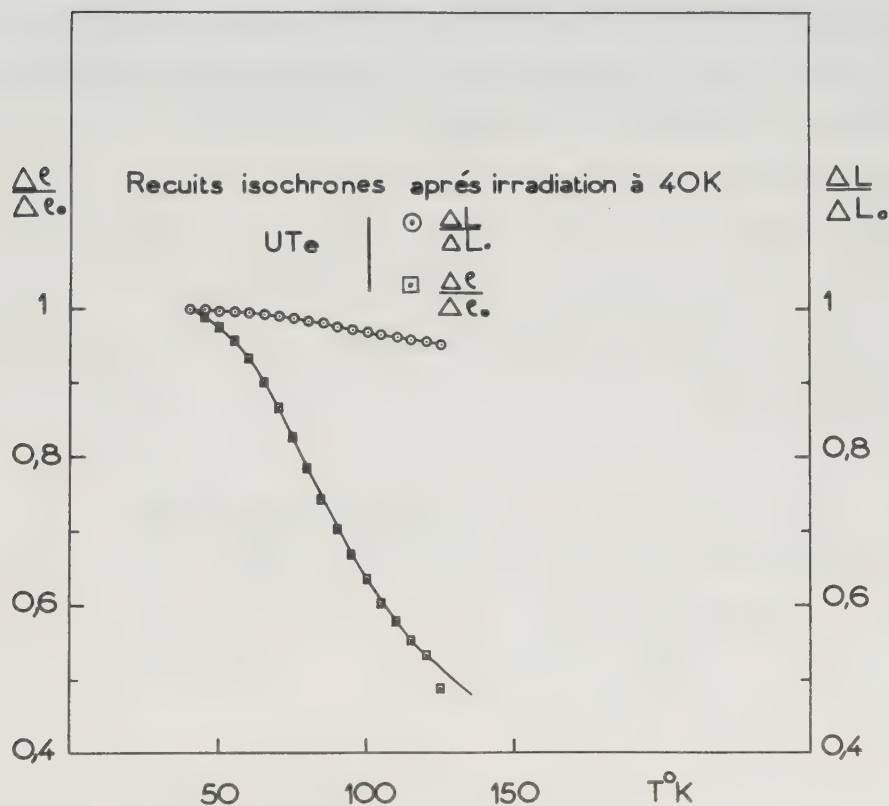


Figure 12 - Recuits isochrones des variations de longueur et de résistivité induites par irradiation à 40 K ($\tau = 6, 13 \cdot 10^{-7}$).

Cette irradiation a été faite sur un fil $UT\alpha$.

- longueur initiale $L_o = 46 \text{ mm}$
- facteur de forme $K = \frac{S}{L} = 5,717 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$
- résistivité initiale à 36 K $\rho = 3,995 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm.}$

Les courbes $\Delta L/L(\tau)$ et $\Delta \rho(\tau)$ de la figure 13, montrent qu'après irradiation ($\tau = 1,7 \cdot 10^{-6}$) on a $\Delta L/L = 3,93 \cdot 10^{-2}$, ce qui correspond à $\Delta L = 1807,8 \text{ microns}$ et $\Delta \rho = 6,42 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm.}$ On retrouve bien la saturation de la résistivité pour $\tau_s = 5 \cdot 10^{-7}$ et une partie aplatie pour $10^{-7} < \tau < 5 \cdot 10^{-7}$. La courbe $\Delta L/L(\tau)$ avec ses deux points d'inflexion $\tau_1 = 1,1 \cdot 10^{-7}$ et $\tau_2 = 5 \cdot 10^{-7}$ et trois parties linéaires.

- $5 \cdot 10^{-8} < \tau < 1,1 \cdot 10^{-7}$
- $3;2 \cdot 10^{-7} < \tau < 5 \cdot 10^{-7}$
- $8,5 \cdot 10^{-7} < \tau$

On voit donc la parfaite reproductibilité de certaines valeurs caractéristiques du taux de combustion (τ_s , τ_1 et τ_2) dans le comportement de l'uranium recuit.

Ces points d'inflexion, qui sont donc bien significatifs, que nous observons à 4,6 et à 36 K et sur l'interprétation desquels nous reviendrons, ont également été observés par LOOMIS [10] pour un polycristal à 10 K.

La figure 14 montre les courbes de recuits isochrones après irradiation ($\tau = 1,72 \cdot 10^{-6}$). Si on les compare avec celles obtenues pour $UT\alpha$ irradié à 42 K, on remarque une bonne reproductibilité des mesures. A 105 K 3% de ΔL_o et 34% de $\Delta \rho_o$ sont guéris. La longueur diminue toujours à partir de 50 K et la résistivité change dès 40 K.

II.2.2.3 - Essais de recuits intermédiaires.

Les recuits observés après irradiations, sont le fait de la recombinaison des défauts. Ils dépendent donc de la nature, de la proportion des défauts en présence et de leur état d'équilibre entre eux. La situation peut être différente en début d'irradiation et à forte dose.

Sur un même échantillon nous avons procédé à des recuits après une faible irradiation, et après une dose plus élevée. Nous ne donnerons ici que des

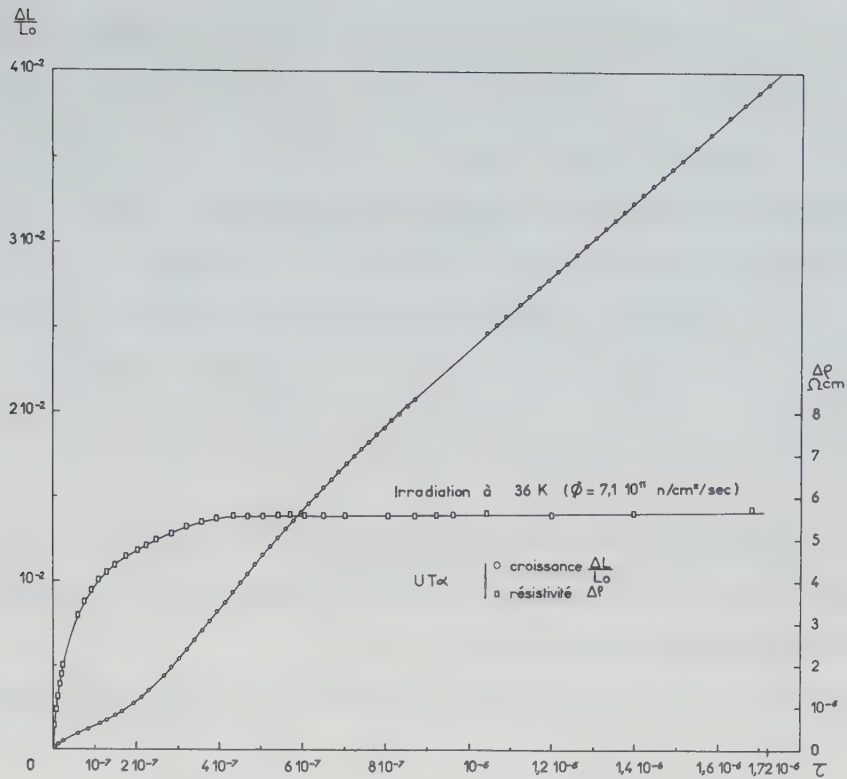


Figure 13 - Variation de longueur et de résistivité pour UTα irradié dans la boucle 20 K :
Courbes $\Delta L/L(\tau)$ et $\Delta \rho(\tau)$ à 36 K pour $0 < \tau < 1,72 \cdot 10^{-6}$.

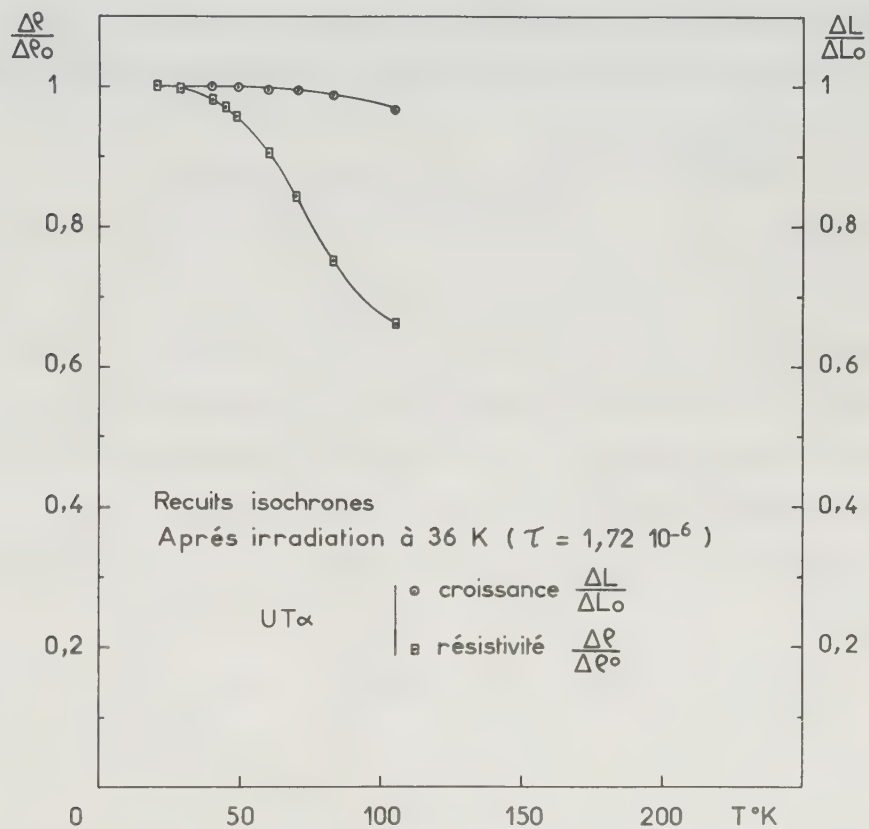


Figure 14 - Recuits isochrones des variations de longueur et de résistivité induites par irradiation à 36 K après $\tau = 1,72 \cdot 10^{-6}$.

résultats concernant la résistivité électrique, car dès le début de l'irradiation, le capteur servant aux mesures de longueurs, s'est avéré défectueux.

Un fil $UT\alpha$ irradié à 33 K dans un flux de $2,6 \cdot 10^{11} \text{ nth/cm}^2 \cdot \text{s}$ jusqu'à $\tau = 5,5 \cdot 10^{-9}$ est recuit de manière isochrone jusqu'à 95 K. Puis l'irradiation est reprise à 44 K dans un flux de $1,3 \cdot 10^{12} \text{ nth/cm}^2 \cdot \text{s}$ jusqu'à $\tau = 1,06 \cdot 10^{-6}$. Une deuxième série de recuits isochrones est alors effectuée jusqu'à 123 K sur ce même échantillon. La figure 15 montre les résultats obtenus.

Après la courte irradiation, on note un recuit presque total vers 100 K (96% à 95 K).

Après la seconde irradiation, on retrouve les résultats déjà obtenus. C'est-à-dire que le recuit de l'augmentation de résistivité se manifeste dès 45 K avec une diminution de 40% vers 125 K.

Ces résultats sont tout à fait en accord avec ceux de JOUSSET [41].

II. 2. 3 - Irradiation dans l'hélium liquide ⁽¹⁾ (4, 6 K).

Les expériences précédentes montrent que les défauts créés par irradiation, se recombinaient à des températures inférieures ou égales à 40 K. Nous avons donc été amenés à irradier dans l'hélium liquide à 4, 6 K. Nous avons observé qu'à cette température le phénomène de croissance est purement athermique.

II. 2. 3. 1 - Influence du flux instantané.

Le dispositif d'irradiation de Garching comprenant un cryostat de recuit, nous avons pu irradier la capsule seule, sans son enroulement chauffant et sans son enveloppe étanche. Les échantillons étaient ainsi directement en contact avec l'hélium liquide. D'autre part, la puissance de réfrigération était suffisamment grande pour que la température de l'échantillon reste constante (4, 6 K) quel que soit le flux instantané (de 10^{11} à $1,5 \cdot 10^{13} \text{ nth/cm}^2 \cdot \text{s}$).

Nous avons donc pu étudier l'influence du flux instantané, lors de ces irradiations.

La figure 16 montre que, lorsque Φ passe de $3 \cdot 10^{11}$ à $3 \cdot 10^{12} \text{ nth/cm}^2 \cdot \text{s}$ et de $3 \cdot 10^{12}$ à $1,5 \cdot 10^{13} \text{ nth/cm}^2 \cdot \text{s}$, aucun changement brusque de pente

¹⁾ Cette expérience a eu lieu au laboratoire de Garching de la Technische Hochschule München.

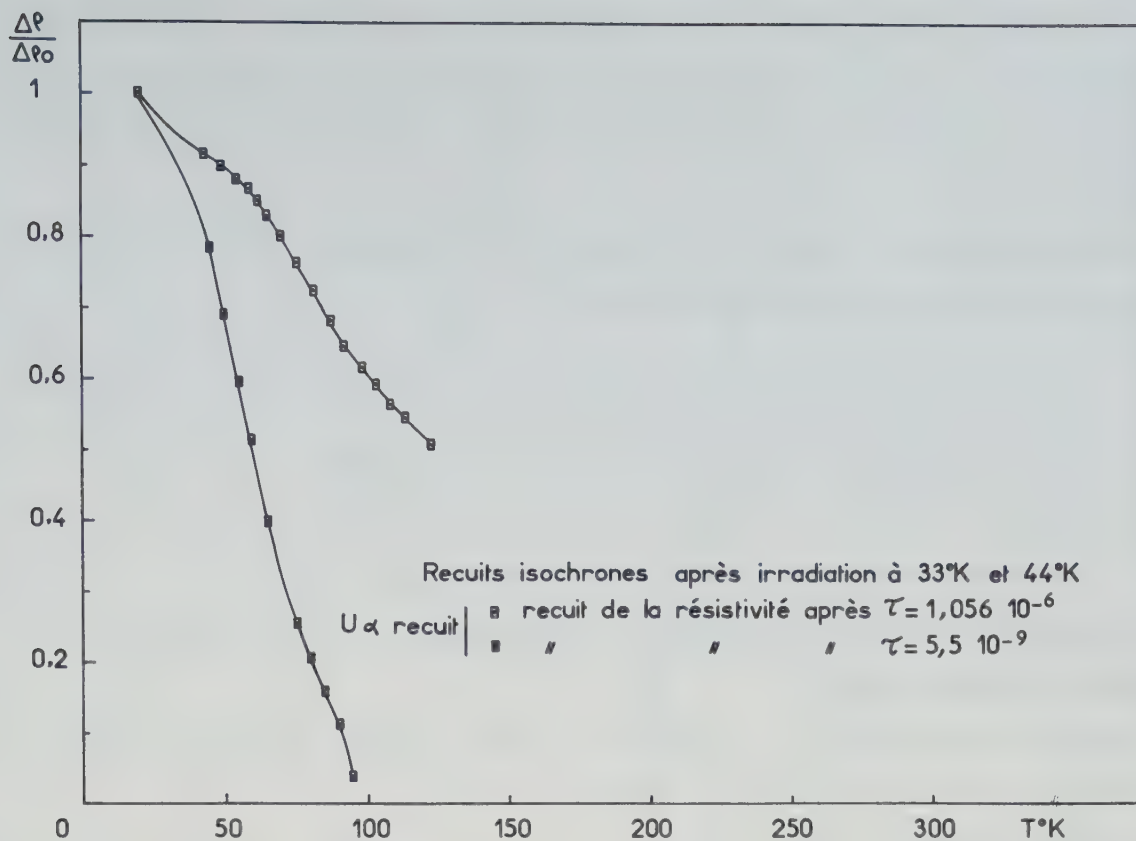


Figure 15 - Recuits isochrones de UTα après irradiation à 33 K et à faibles doses ($\tau = 5,5 \cdot 10^{-9}$), et après irradiation à 44 K et fortes doses ($\tau = 10^{-6}$).

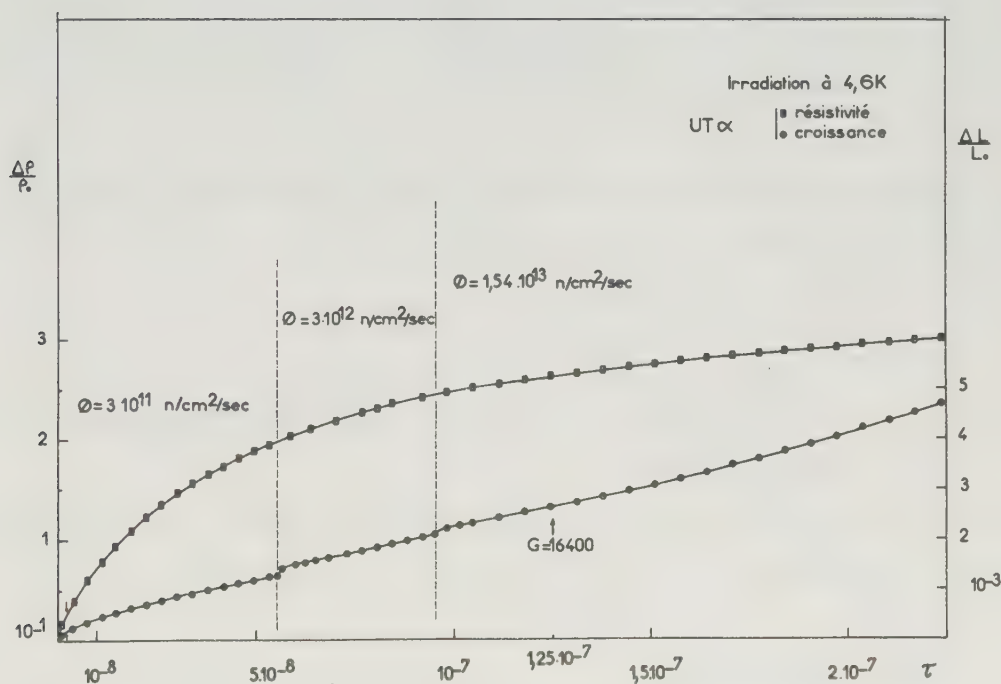


Figure 16 - Courbes $\Delta L/L(\tau)$ et $\rho(\tau)$ correspondant à UTα irradié à 4,6 K et montrant l'influence négligeable du flux instantané ($\frac{d}{d\tau}(\Delta L/L)$ et $\frac{d}{d\tau}(\Delta \rho)$ ne sont pas modifiées quand Φ augmente d'un facteur 10).

n'apparaît sur $\Delta \rho (\tau)$ et $\Delta L/L (\tau)$. Les petits décrochements observés sur $\Delta L/L (\tau)$ sont dus uniquement à de légères modifications des caractéristiques du capteur.

Nous verrons au chapitre III, que ces résultats permettent de dire que le phénomène de croissance est athermique à 4,6 K.

II.2.3.2 - Résultats pour $UT\alpha$.

- longueur initiale de l'échantillon $L_o = 35,5 \text{ mm}$
- facteur de forme $K = \frac{S}{L} = 7,458 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$
- résistivité initiale à 4,6 K $\rho = 2,503 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm.}$

La figure 17 montre les variations de longueurs et de résistivité, sur l'ensemble de l'irradiation.

Après irradiation ($\tau = 8,59 \cdot 10^{-7}$) on a $\Delta L/L = 2,33 \cdot 10^{-2}$ soit $L = 827,12 \text{ microns}$ et $\Delta \rho = 8,4 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm.}$

La résistivité se sature quand $\tau_s = 5 \cdot 10^{-7}$ ($\Delta \rho = 8,27 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm.}$).

L'accroissement relatif de longueur présente toujours deux points d'inflexions pour $\tau_1 = 1,4 \cdot 10^{-7}$ et $\tau_2 = 5 \cdot 10^{-7}$ et trois domaines de variation linéaire :

- $3 \cdot 10^{-8} < \tau < 1,4 \cdot 10^{-7}$
- $3 \cdot 10^{-7} < \tau < 5 \cdot 10^{-7}$
- $6,5 \cdot 10^{-7} < \tau$

La figure 18 donne les résultats des recuits isochrones après irradiation.

La résistivité présente trois stades de recuits :

- 1 - De 4,6 K à 20 K
- 2 - De 20 K à 40 K
- 3 - De 40 K à 100 K puis une vitesse de recuit plus lente de 100 K à 300 K.

Le recuit est un peu plus important que ceux obtenus après irradiation dans l'hydrogène liquide 56% de l'accroissement de résistivité à 135 K et 72% à 300 K.

L'accroissement de longueur ΔL reste constant et égal à ΔL_o entre 4,6 K et 20 K. De 20 K à 40 K (2ème stade) on note une augmentation de ΔL qui atteint un maximum de l'ordre de 2% à 40 K. Puis ΔL diminue de 40 K à 100 K (3ème stade) et continue à diminuer, mais plus lentement de 100 K à 300 K. Là

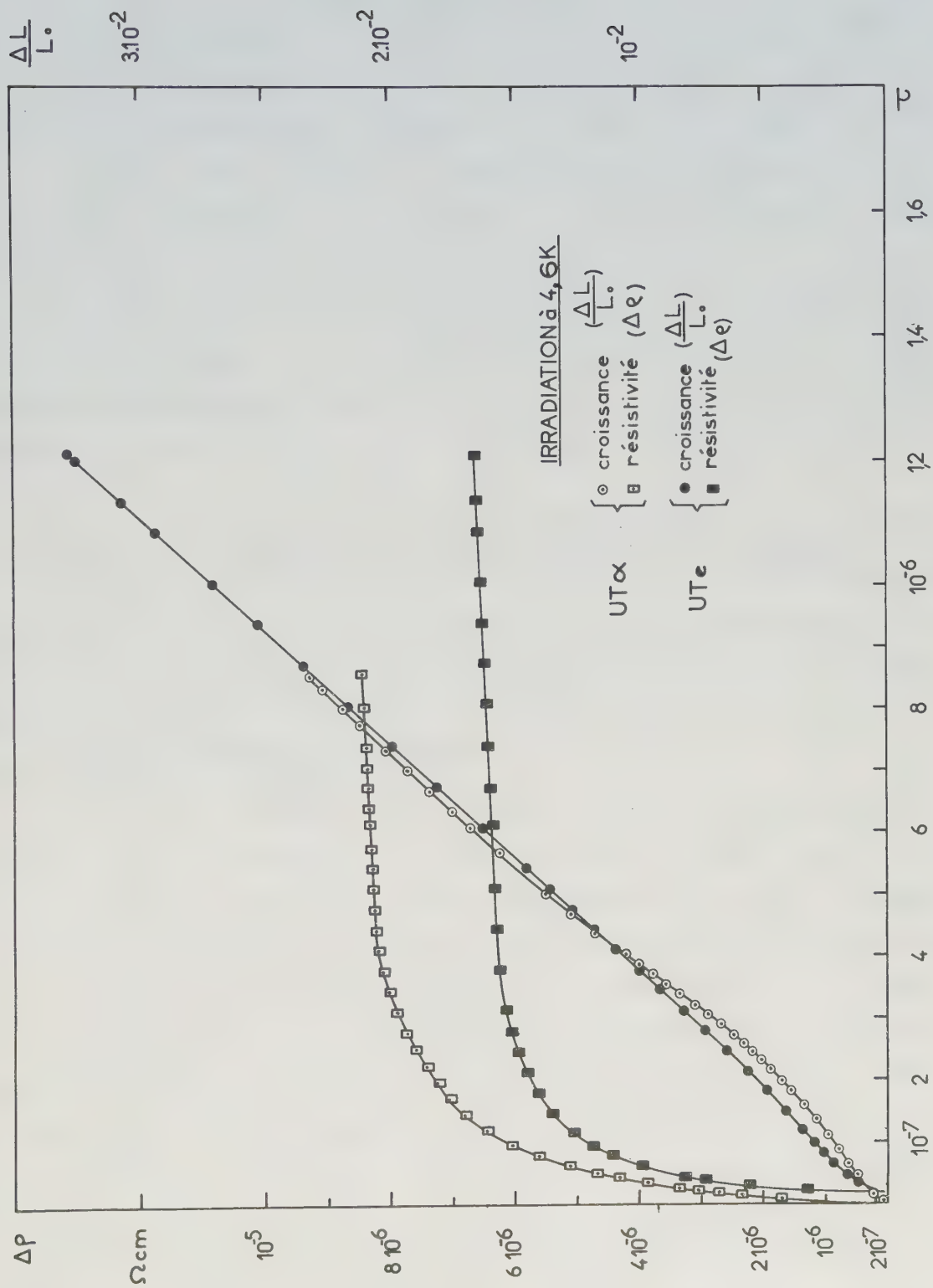


Figure 17 - Variation de longueur et de résistivité de $UT\alpha$ et UTc irradiés à 4,6 K.

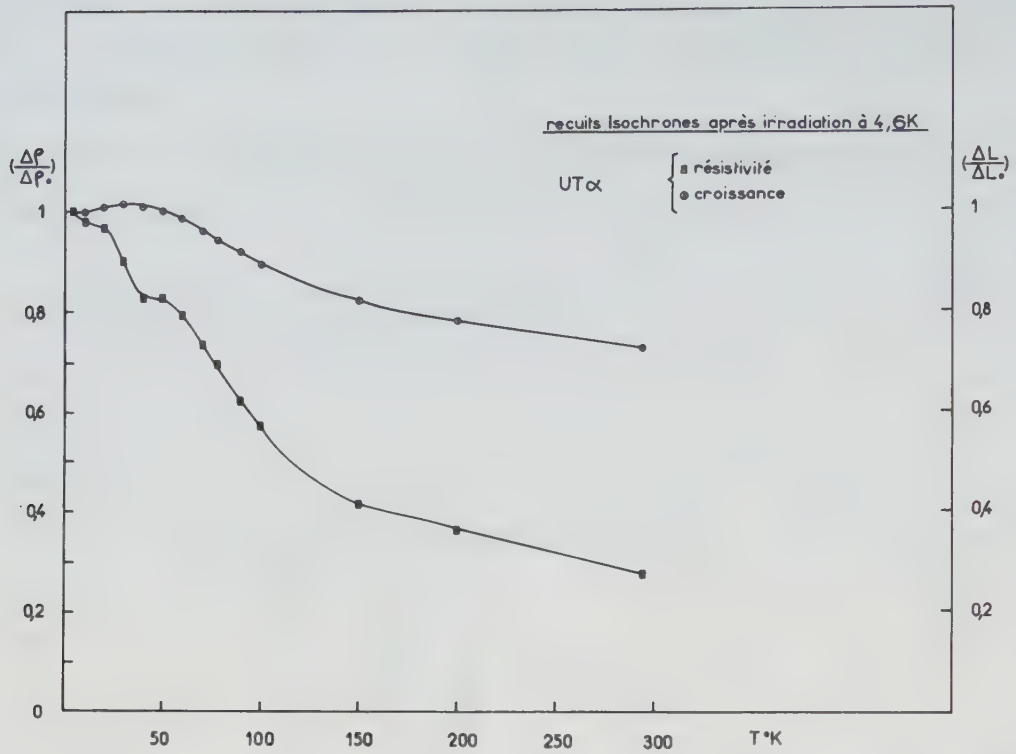


Figure 18 - Recuits isochrones des variations de longueur et de résistivité induites dans UTα par irradiation à 4,6 K après $\tau = 8,6 \cdot 10^{-7}$.

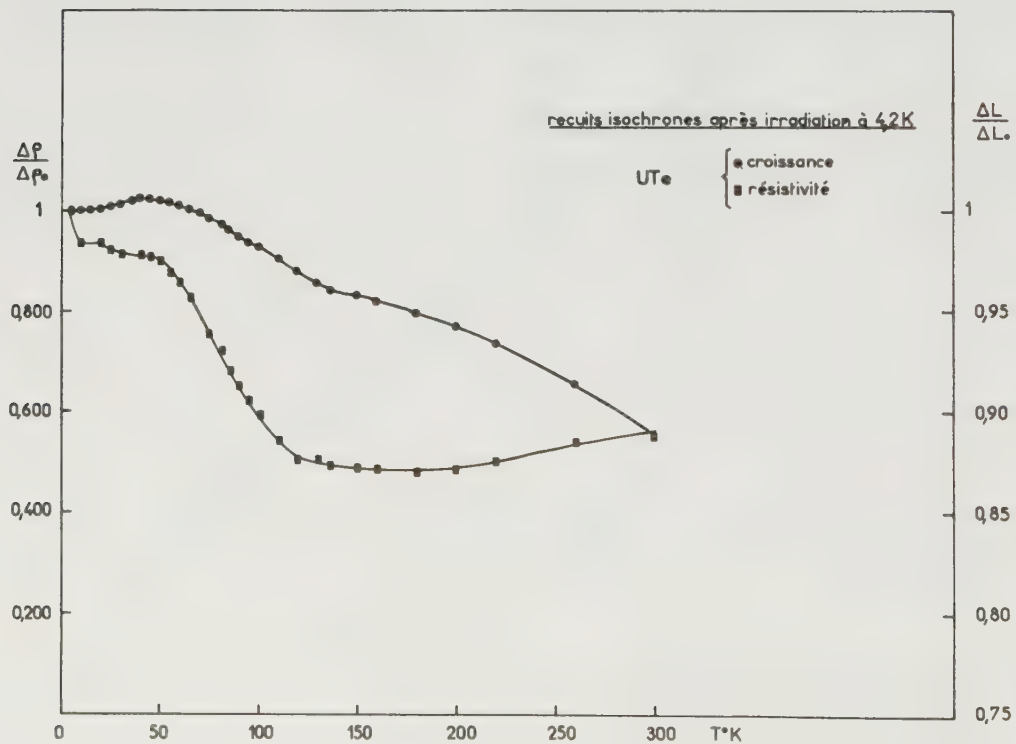


Figure 19 - Recuits isochrones des variations de longueur et de résistivité induites par irradiation dans UTe à 4,6 K après $\tau = 1,2 \cdot 10^{-6}$.

encore le recuit est plus accentué qu'après les irradiations à l'hydrogène liquide. Il se recuit 16% de ΔL_0 à 135 K et 27% à 300 K.

II. 2. 3. 3 - Résultats pour UTe.

- longueur initiale de l'échantillon $L_0 = 34$ mm
- facteur de forme $K = \frac{S}{L} = 8,427 \cdot 10^{-5}$ cm
- résistivité initiale à 4,6 K $\rho = 5,36 \cdot 10^{-6}$ Ω cm.

$\Delta \rho (\tau)$ et $\Delta L/L (\tau)$ sont portées sur la figure 17.

Après irradiation ($\tau = 1,21 \cdot 10^{-6}$) $\Delta L/L = 3,29 \cdot 10^{-2}$ soit $\Delta L = 1117,3$ microns et $\Delta \rho = 6,62 \cdot 10^{-6}$ Ω cm.

La valeur de l'accroissement de résistivité, au début de la saturation est $\Delta \rho = 6,35 \cdot 10^{-6}$ pour $\tau_s = 5 \cdot 10^{-7}$. Comme pour UTe à 40 K, la variation de longueur ne présente qu'un point d'inflexion pour $\tau_1 = 2 \cdot 10^{-7}$ et deux domaines linéaires :

- $1,2 \cdot 10^{-7} < \tau < 2 \cdot 10^{-7}$
- $3 \cdot 10^{-7} < \tau$

La résistivité présente les trois stades de recuits isochrones. Le premier stade de 4,6 K à 20 K est un peu plus prononcé, le deuxième stade de 20 K à 40 K est moins marqué. Le troisième stade de 40 K à 100 K est identique. Le recuit maximum est de 50% à 125 K. L'effet du recuit sur la longueur est analogue à celui observé sur UTα (figure 19).

$$\Delta L = c^{te} = \Delta L_0 \text{ pour } 4,6 \text{ K} < T(\text{K}) < 20 \text{ K.}$$

$$\Delta L \text{ augmente pour } 20 \text{ K} < T(\text{K}) < 40 \text{ K}$$

$$\text{jusqu'à une valeur maximum } \Delta L / \Delta L_0 = 0,6\% \text{ à } 40 \text{ K.}$$

ΔL diminue dans le troisième stade (de 40 K à 100 K) et cette diminution est ralentie de 130 K à 300 K.

Signalons que pour ces irradiations à 4,6 K, l'effet de trempe [41 - 42] n'a pas été observé. Sans doute le refroidissement des échantillons avant irradiation a-t-il été trop lent. D'autre part les courbes de recuits isochrones ont été obtenues par des mesures à la température de recuit et par différences avec les courbes $\rho = f(T^\circ\text{K})$ et $U = F(T^\circ\text{K})$ tracées avant irradiations. Les résultats devraient être corrigés en tenant compte de l'écart à la loi de Matthiessen mais l'écart à cette loi n'est pas connu pour des défauts créés par irradiation à 4,6 K.

II. 2. 4 - Irradiation du monocristal.

Comme on l'a vu dans l'introduction, la contribution des boucles de dislocations à l'allongement est en principe nulle dans la direction $[001]$. Si on mesure une variation de longueur dans cette direction elle sera due uniquement au gonflement produit par les défauts ponctuels. Il est donc intéressant d'irradier un monocristal et de mesurer sa longueur suivant l'axe C.

Dans cette expérience, l'augmentation importante de la résistivité dès le début de l'irradiation, indique que la température de l'échantillon est supérieure à celle donnée par le thermocouple. Ceci s'explique très bien, car dans ce cas nous n'avons pas pu mettre le thermocouple au contact de l'échantillon dont la masse est relativement importante. Pour connaître la température d'irradiation T K de l'échantillon, il suffit de trouver $\rho_{T,0}$ la résistivité initiale à la température T K.

II. 2. 4. 1 - Détermination de T K.

Il est très difficile de connaître $\rho_{T,0}$ par extrapolation de la courbe $\rho_T(\tau)$.

Par contre en interrompant l'irradiation à deux reprises (par exemple pour $\tau_a = 2,75 \cdot 10^{-8}$ et $\tau_b = 2 \cdot 10^{-7}$) pour effectuer des mesures à 20 K, on pourra connaître :

$$(\Delta \rho)_{20, \tau_a} = \rho_{20, \tau_a} - \rho_{20,0}$$

et

$$(\Delta \rho)_{20, \tau_b} = \rho_{20, \tau_b} - \rho_{20,0}$$

La résistivité initiale à 20 K est $\rho_{20,0} = 1,97 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm}$.

Posons :

$$(\Delta \rho)_{T, \tau_a} = \rho_{T, \tau_a} - \rho_{T,0}$$

et

$$(\Delta \rho)_{T, \tau_b} = \rho_{T, \tau_b} - \rho_{T,0}$$

Le rapport $(\Delta \rho)_{T, \tau} / (\Delta \rho)_{20, \tau}$ est constant quel que soit τ , car il est égal au rapport des résistivités des défauts aux deux températures considérées (T K et 20 K). Si la loi de Matthiessen était respectée ce rapport serait égal à 1. On a donc :

$$\begin{aligned} \frac{(\Delta \rho)_{T, \tau_a}}{(\Delta \rho)_{20, \tau_a}} &= \frac{(\Delta \rho)_{T, \tau_b}}{(\Delta \rho)_{20, \tau_b}} = \frac{(\Delta \rho)_{T, \tau_a} - (\Delta \rho)_{T, \tau_b}}{(\Delta \rho)_{20, \tau_a} - (\Delta \rho)_{20, \tau_b}} \\ &= \frac{\rho_{T, \tau_a} - \rho_{T, \tau_b}}{\rho_{20, \tau_a} - \rho_{20, \tau_b}} \end{aligned}$$

Après avoir mesuré ρ_{T, τ_a} , ρ_{T, τ_b} , ρ_{20, τ_a} et ρ_{20, τ_b} , on trouve ce rapport égal à 0,6. On en déduit donc :

$$\begin{aligned} \rho_{T,0} &= \rho_{T, \tau_a} - 0,6 (\Delta \rho)_{20, \tau_a} \\ \text{et} \quad \rho_{T,0} &= \rho_{T, \tau_b} - 0,6 (\Delta \rho)_{20, \tau_b}. \end{aligned}$$

En faisant la moyenne des deux valeurs de $\rho_{T,0}$ trouvées ($\rho_{T,0} = 7,4 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm}$) et en se reportant à la courbe $\rho (T^\circ \text{K})$ mesurée avant irradiation, on trouve $T = 64 \text{ K}$.

Remarque : JOUSSET [42] a trouvé $\frac{(\Delta \rho)_{64}}{(\Delta \rho)_{20}} \approx 0,6$ pour des défauts créés par irradiation à la température ordinaire. On voit que les défauts créés à 64 K ou à température ordinaire présentent la même déviation par rapport à la règle de Matthiessen.

II. 2. 4. 2 - Résultats obtenus sur le monocristal.

- longueur initiale de l'échantillon, parallèlement à l'axe C (à 7° près) :

$$L_0 = 14 \text{ mm}$$

$$\text{- facteur de forme : } K = \frac{S}{L} = 1,093 \cdot 10^{-2} \text{ cm}$$

La valeur élevée du facteur de forme implique un courant d'alimentation élevé (1 A stabilisé à 10^{-5}). On peut donc s'attendre à une certaine dispersion des résultats s'ajoutant aux fluctuations de température :

$$\text{- Flux instantané : } \Phi = 7,1 \cdot 10^{11} \text{ nth/cm}^2 \cdot \text{s}.$$

La figure 20 montre les courbes $\Delta \rho (\tau)$ et $\Delta L/L (\tau)$ obtenues. La précision sur les mesures de longueur n'est pas très bonne dans ce cas, car les variations de longueur sont très faibles ($\Delta L = 0,74 \text{ microns}$ pour $\tau = 2 \cdot 10^{-8}$). Au delà de $\tau = 2 \cdot 10^{-8}$ il n'a pas été possible de mesurer correctement $\Delta L/L$.

Par contre les mesures de résistivité montrent que l'on tend vers une saturation. En fin d'irradiation ($\tau = 2 \cdot 10^{-7}$) $\Delta \rho = 2,5 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm}$ ce qui est faible, mais normal compte tenu de la température.

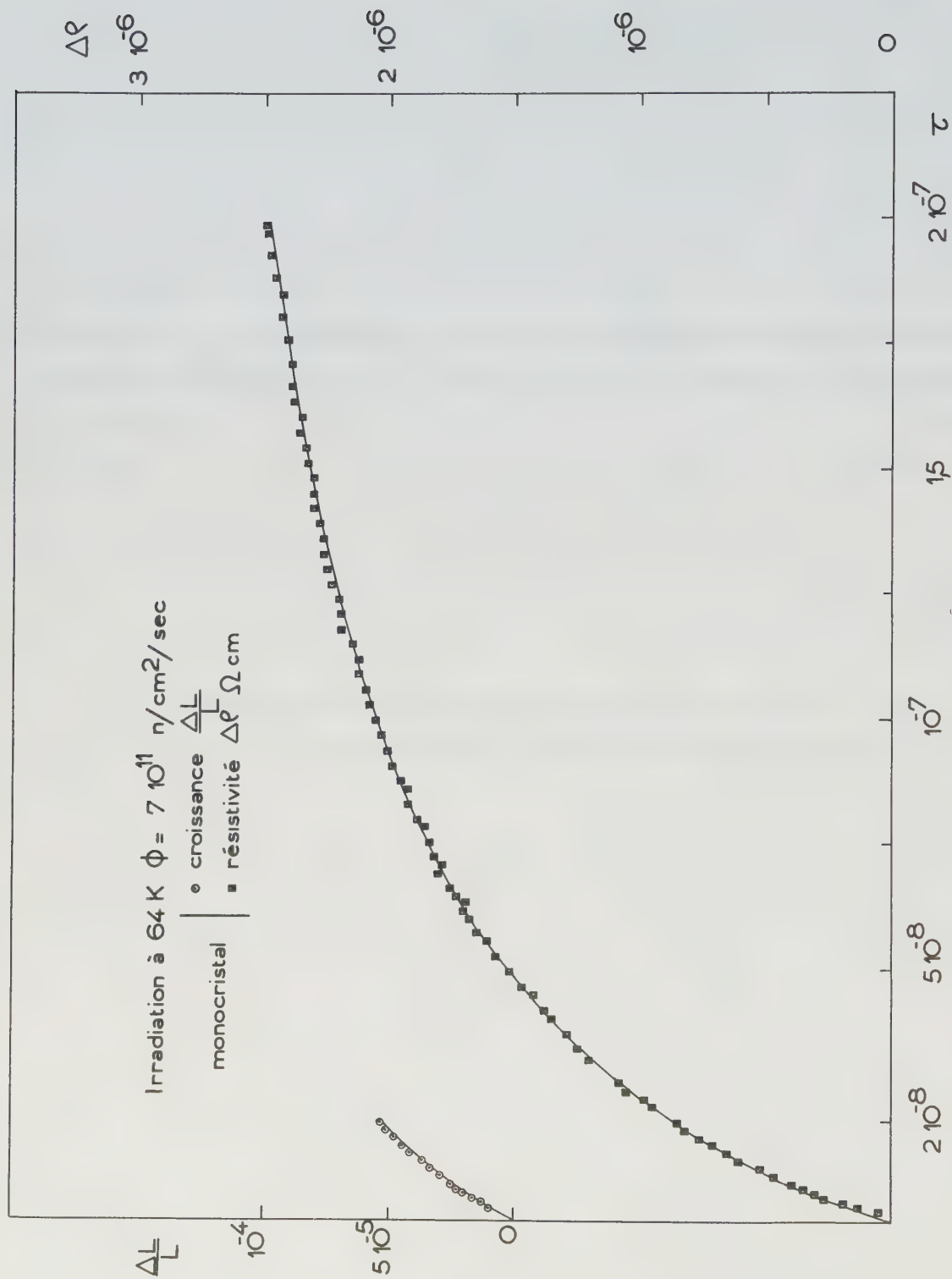


Figure 20 - Variation de longueur $\Delta L/L(\tau)$ et de résistivité $\Delta \rho(\tau)$, le long de l'axe C d'un monocristal d'uranium irradié à 64 K.

II.3 - EXPLOITATION DES RESULTATS.

II.3.1 - Définition des coefficients instantanés de croissance et de résistivité.

Nous venons de voir que les variations de longueurs n'étaient généralement pas proportionnelles aux taux de combustion. On est donc amené à considérer un coefficient de croissance instantané G_i tel que :

$$G_i = \frac{d}{d\tau} (\Delta L/L) \quad (2.1)$$

Par analogie nous définirons un coefficient instantané pour les variations de résistivité

$$R_i = \frac{d}{d\tau} (\Delta \rho) \quad (2.2)$$

G_i et R_i sont représentatifs du nombre de défauts laissés par une fission à l'instant i . Nous verrons au chapitre III, la relation qui lie G_i et R_i à ce nombre. En particulier les défauts laissés par les toutes premières fissions isolées, seront caractérisés par les coefficients instantanés initiaux G_0 et R_0 .

Nous appellerons G_i^∞ et R_i^∞ , les coefficients instantanés devenus constants, quand le taux de combustion est suffisamment grand ($\tau > 10^{-6}$). C'est-à-dire quand $\Delta L/L$ varie linéairement avec τ et que la résistivité est saturée ($R_i^\infty \simeq 0$).

Les valeurs de G_i et R_i en fonction de $\ln(\tau)$ sont portées sur les figures : 21 - 22 - 23. Les points d'inflexion et les parties linéaires sont ainsi parfaitement en évidence.

Les valeurs de G_0 et R_0 sont déterminées par extrapolation de courbes $G_i(\Delta L/L)$ et $R_i(\Delta \rho)$ pour $\Delta L/L = 0$ et $\Delta \rho = 0$. (figures 24 et 25). Nous avons également porté les valeurs du rapport $\frac{G_i}{R_i}$ en fonction de $\ln(\tau)$ sur la figure 26.

Les résultats sont rassemblés dans le tableau I.

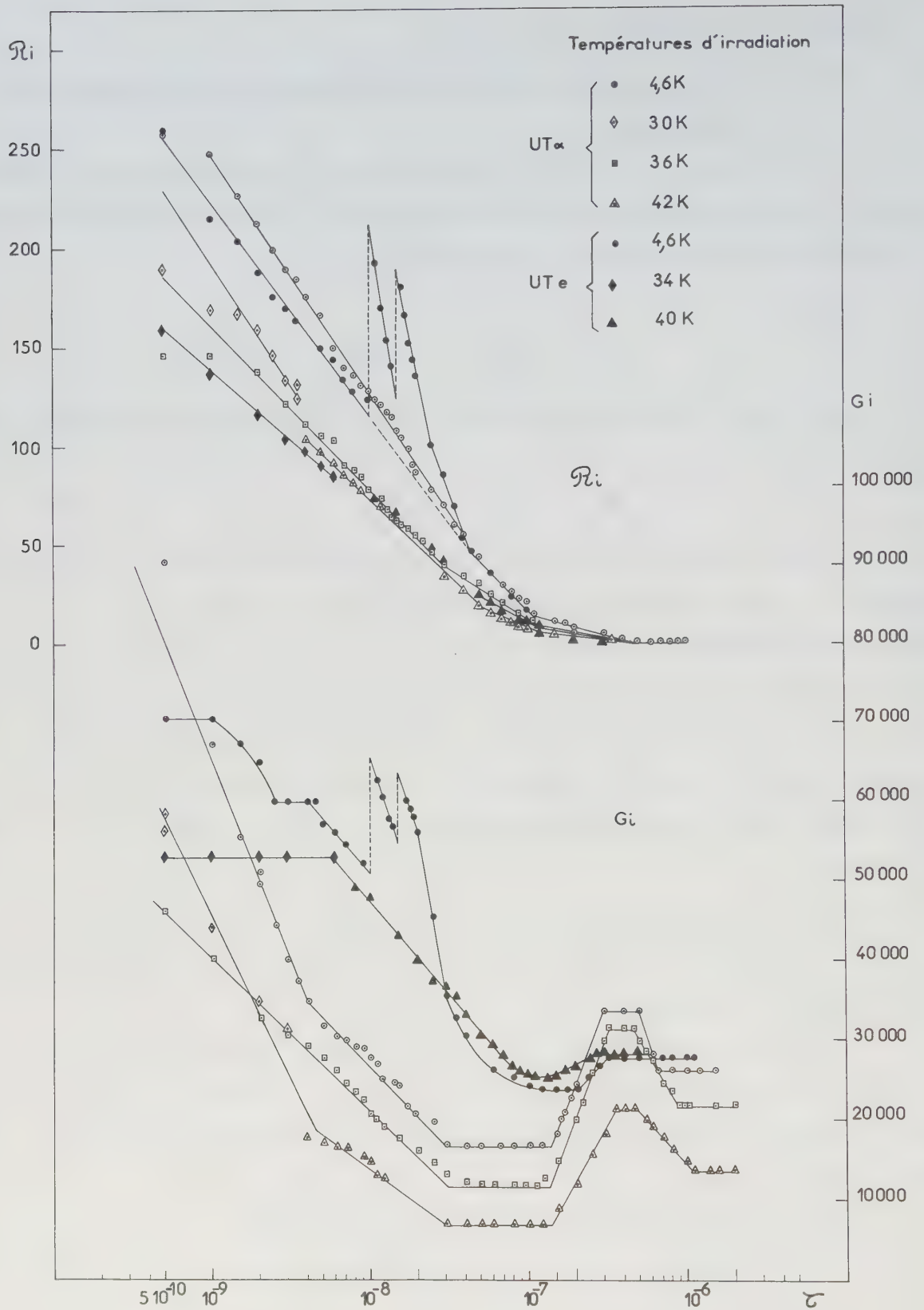


Figure 21 - Variations de G_i et R_i en fonction de τ , à différentes températures.

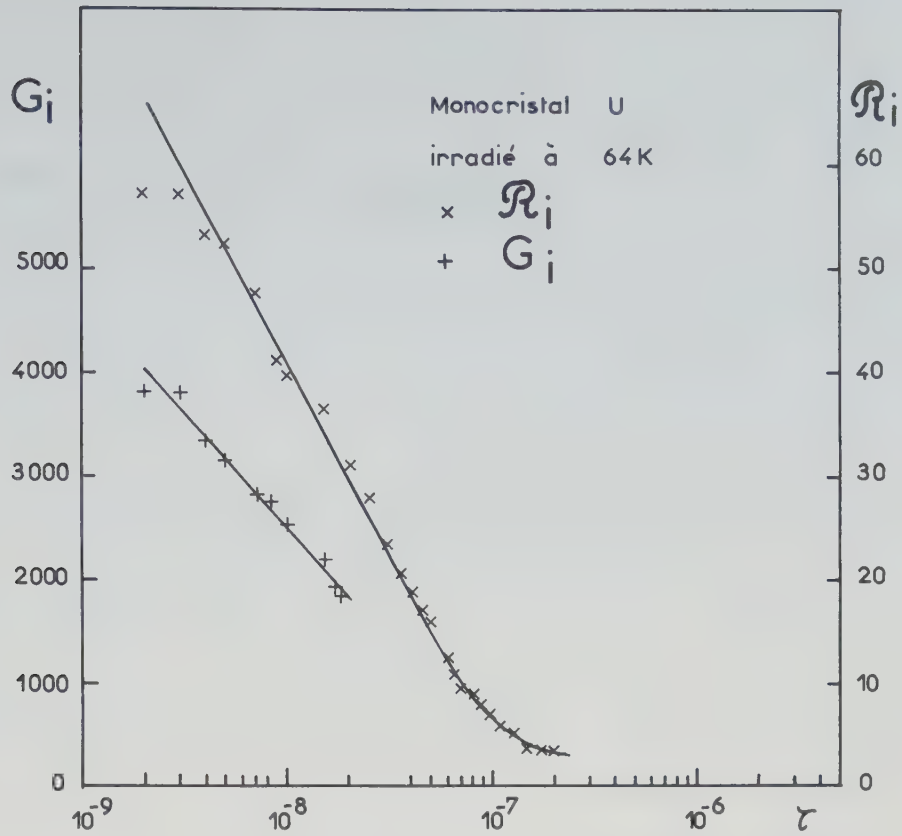


Figure 22 - Variations de G_i et R_i en fonction de τ , dans le cas du monocristal irradié à 64 K.

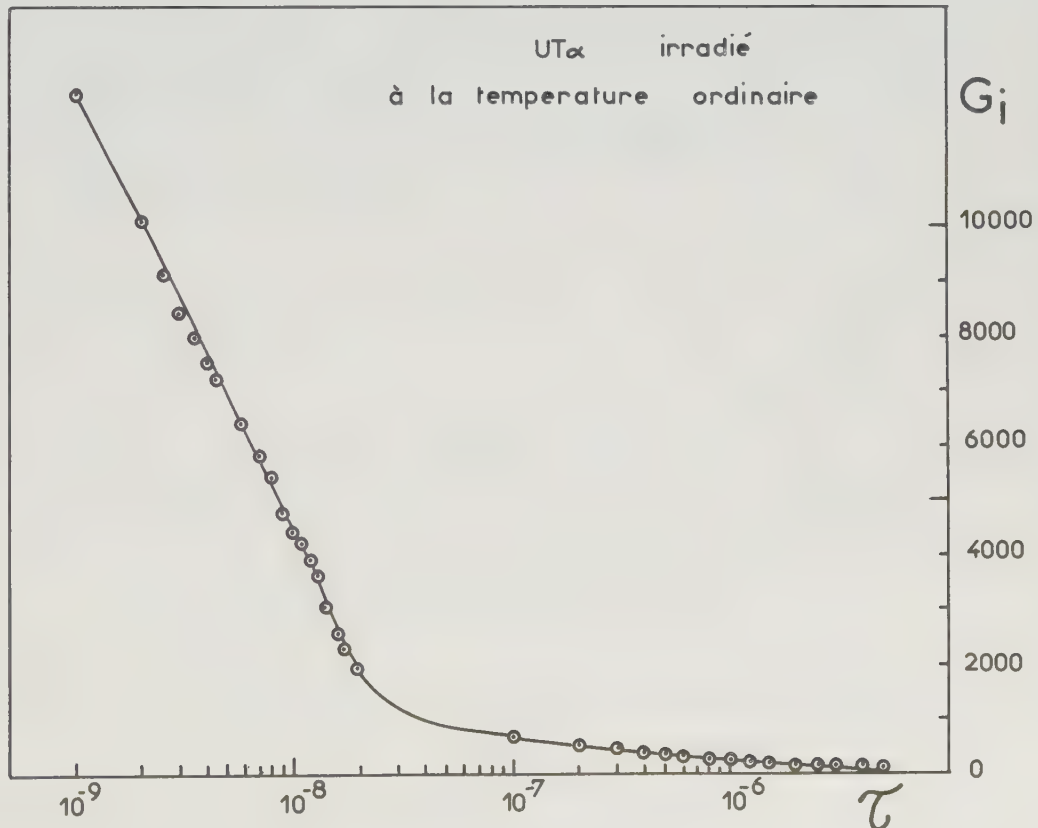


Figure 23 - Variations de G_i et R_i en fonction de τ , à température ordinaire.

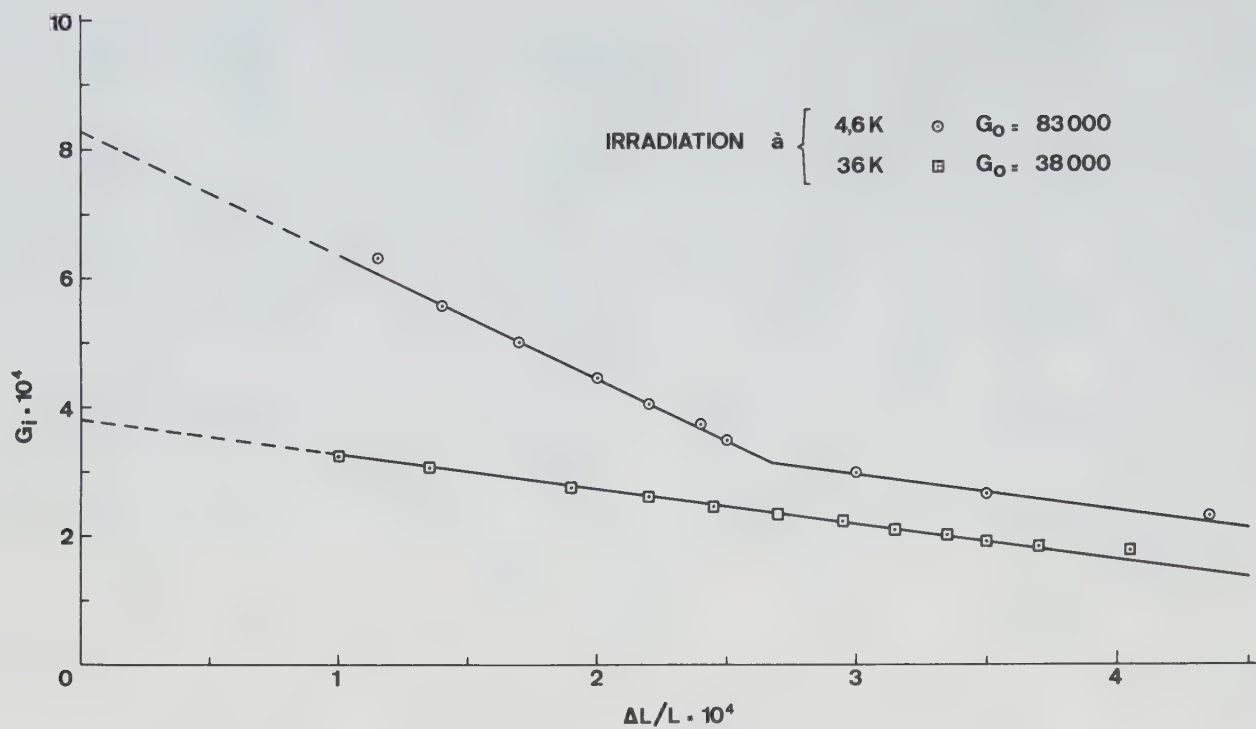


Figure 24 - Variations de G_i en fonction de $\Delta L/L$, à 4,6 K et 36 K.

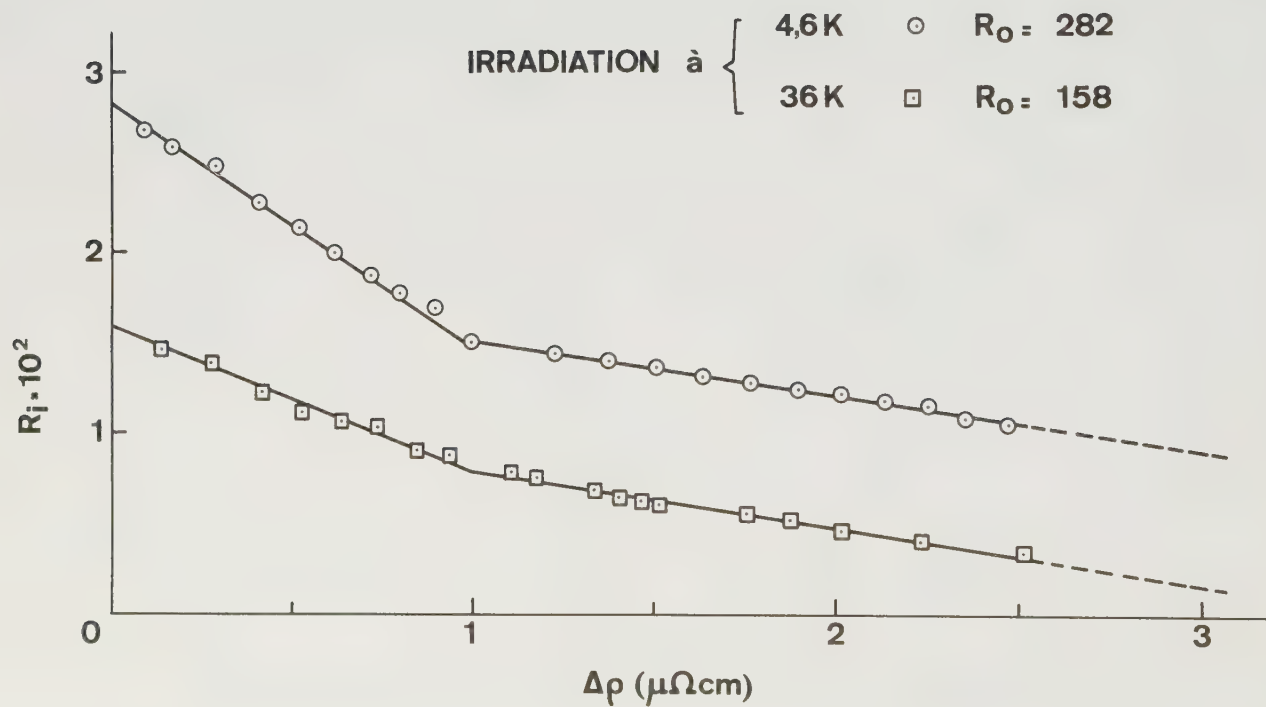


Figure 25 - Variations de R_i en fonction de $\Delta \rho$, à 4,6 K et 36 K.

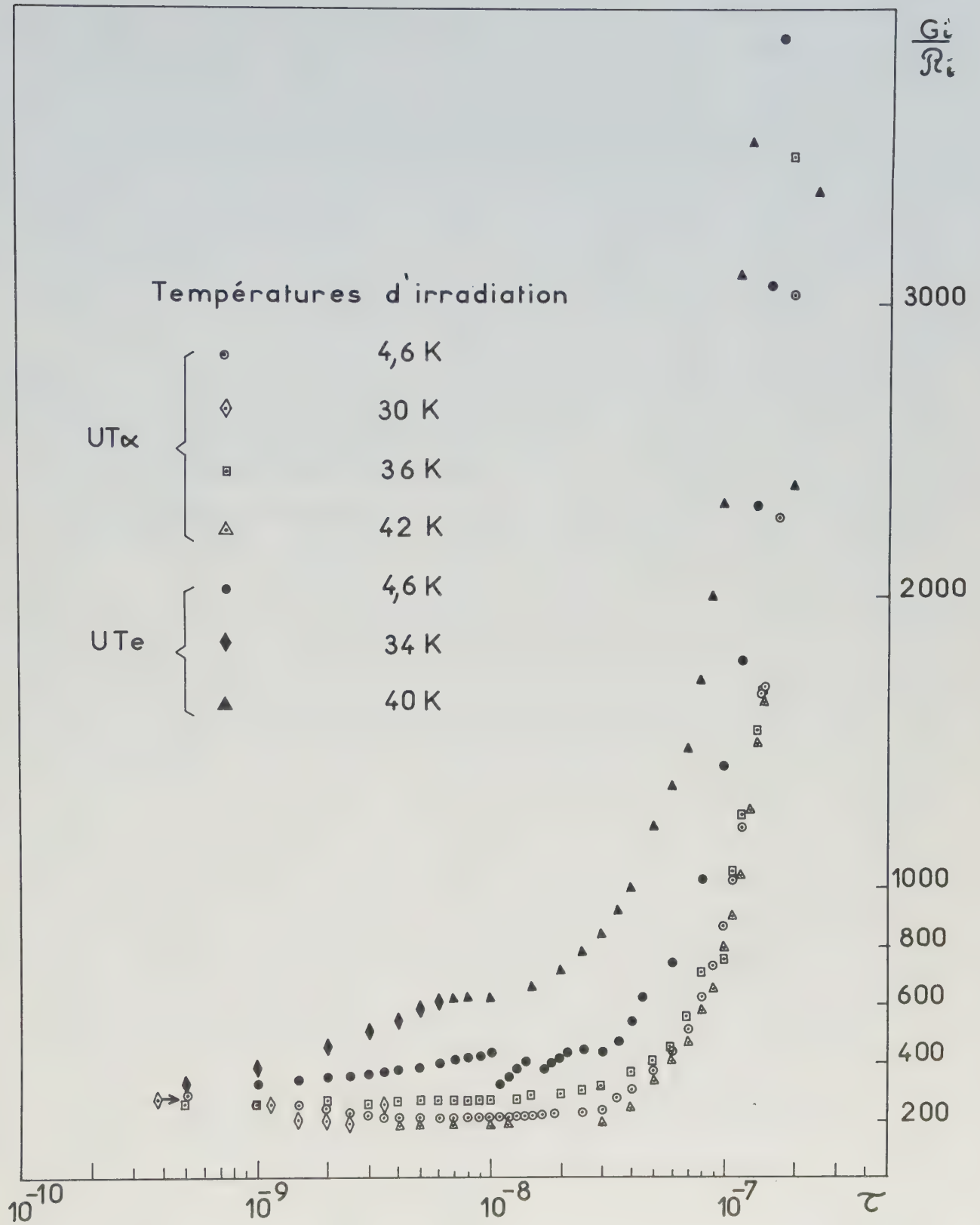


Figure 26 - Variation du rapport G_i/R_i en fonction de τ à différentes températures.

Nature des échantillons	T. K.	G_o $\tau = 0$	R_o $\tau = 0$	G_i^∞ $\tau > 6.10^{-7}$	$G_i^\infty [010]$ $\tau > 6.10^{-7}$	R_i^∞ $\tau > 6.10^{-7}$	$\Delta p R_{cm}$ $\tau = 5.10^{-7}$	$\Delta L/L$ $\tau = 5.10^{-7}$
U T α	4, 6	82 500	280	26 000	27 600	0, 4	8, 24. 10^{-6}	1, 37. 10^{-2}
	30	57 000	200					
	36	38 000	160	21 500	22 800	0, 4	5, 56. 10^{-6}	1, 15. 10^{-2}
	42			13 500	14 300	0, 3	5, 12. 10^{-6}	7, 5. 10^{-3}
	77	> 5 500		880	933			8. 10^{-4}
	313	13 000		200	212			4. 10^{-4}
Mono- cristal axe C	64	4 600	70					
U T e	4, 6	80 000	290	27 500	46 700	0, 4	6, 3 . 10^{-6}	1, 33. 10^{-2}
	34	56 000	160					
	40			28 000	47 000	0, 4	4, 76. 10^{-6}	1, 42. 10^{-2}
	77	10 500		4 800	8 160			4. 10^{-3}
	313			3 100	5 300			1, 5. 10^{-3}

TABLEAU I

Chapitre III

RELATIONS ENTRE GRANDEURS PHYSIQUES (L, ρ) ET CONCENTRATIONS DE DEFAUTS

Pour mieux comprendre le phénomène de croissance depuis l'instant initial de l'irradiation, il faut tenir compte à la fois du rôle joué par les boucles de dislocation et par les défauts ponctuels.

Il y a une relation, d'une part entre l'accroissement de longueur (ou de résistivité) et la concentration de chaque type de défauts, d'autre part entre le taux de variation de longueur (ou de résistivité) et le nombre de défauts laissés par une fission. Prenons par exemple un cristal d'uranium α , de forme cubique, dont les trois arêtes sont parallèles aux trois axes cristallographiques $[100]$, $[010]$ et $[001]$, dont le volume est V et contenant N atomes par cm^3 . Nous avons vu dans l'introduction qu'un tel cristal sous irradiation, s'allonge et se raccourcit, dans les mêmes proportions respectivement dans les directions $[010]$ et $[100]$ et cela sans changement notable de volume, du moins pour des irradiations assez poussées ($\tau > 10^{-6}$). Tout se passe donc comme si des atomes étaient déplacés des faces (100) sur les faces (010). Il a été montré que la variation relative de longueur était égale à la variation relative du nombre d'atomes déplacés (rapport du nombre d'atomes déplacés au nombre total d'atomes). Avec nos notations, le nombre d'atomes dans le cristal est VN . Après un taux de combustion τ , le nombre total de fission est $VN\tau$. Si n est le nombre d'atomes déplacés par fission des plans (100) dans les plans (010), le nombre total d'atomes déplacés est $nVN\tau$, d'où la variation de longueur, le long de l'axe $[010]$ par exemple :

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{n V N \tau}{V N}$$

soit
$$\frac{1}{\tau} \frac{\Delta L}{L} = n .$$

D'après la définition du coefficient de croissance $G = \frac{1}{\tau} \frac{\Delta L}{L}$

on a donc :

$$G = n$$

ce qui représente une signification physique de ce coefficient.

Dans ce chapitre nous préciserons ce genre de relations pour en tirer les conséquences immédiates.

Etablissons d'abord une relation générale simple qui lie une concentration de défaut $C(\tau)$ au nombre $n(\tau)$ de défauts laissés par une fission.

Pour $N d\tau$ fission par cm^3 , la variation du nombre $N(\tau)$ de défaut par cm^3 est :

$$dN(\tau) = n(\tau) N d\tau.$$

En prenant $d\tau$ suffisamment petit pour que $n(\tau)$ soit constant dans cet intervalle et en remarquant que $C(\tau) = \frac{N(\tau)}{N}$ on a :

$$\frac{d}{d\tau} C(\tau) = n(\tau) \quad (3.1)$$

Cette expression de la dérivée d'une concentration par rapport au taux d'irradiation nous sera utile par la suite en utilisant les notations suivantes :

- pour les concentrations de défauts :

$C_p(\tau)$	paires de Frenkel plus ou moins proches
$C_i(\tau)$	interstitiels libres
$C_l(\tau)$	lacunes libres
$C_{ib}(\tau)$	interstitiels en boucles
$C_{lb}(\tau)$	lacunes en boucles.

- pour les défauts supplémentaires laissés par une fission :

$p(\tau)$	paires de Frenkel plus ou moins proches
$i(\tau)$	interstitiels libres
$l(\tau)$	lacunes libres
$i_b(\tau)$	interstitiels en boucles
$l_b(\tau)$	lacunes en boucles.

On aura donc :

$$\frac{d}{d\tau} C_p(\tau) = p(\tau) \dots \text{etc}$$

III.1 - FORMULES DE RESISTIVITE.

Les défauts ponctuels sont essentiellement responsables de l'accroissement de résistivité [43]. Nous allons montrer en effet que la résistivité des boucles est faible - et éventuellement négligeable - comparée à celle des défauts ponctuels.

D'après ZIMAN [44] la résistivité d'une ligne de dislocation peut être considérée comme pratiquement égale à la résistivité d'un chapelet de lacunes jointives longeant la dislocation. RIDER et FOXON [45] ont mesuré la résistivité des dislocations dans l'aluminium, et ils trouvent :

$$\rho_d = (1,8 \pm 0,1) \cdot 10^{-19} \Omega \text{cm}^3 \text{ à } 4,2 \text{ K}$$

et
$$\rho_d = (2,9 \pm 0,4) \cdot 10^{-19} \Omega \text{cm}^3 \text{ à } 77 \text{ K}$$

en évaluant la densité de lignes de dislocations C_d (cm/cm^3), par microscopie électronique.

L'augmentation de résistivité due aux boucles de dislocation est :

$$\Delta \rho_d (\Omega \text{cm}) = \rho_d \times C_d$$

On peut également évaluer $\Delta \rho_d$ à l'aide de la règle de ZIMAN. Si N est le nombre d'atomes par cm^3 , le nombre d'atomes par cm sera $N^{1/3}$. Le nombre de lacunes efficaces par cm^3 est donc $C_d N^{1/3}$. La concentration en lacunes est donc :

$$C_1 \% = \frac{C_d N^{1/3}}{N} \times 100$$

d'où
$$\Delta \rho_d = \frac{C_d N^{1/3}}{N} \times 100 \cdot \rho_1 = \rho_d C_d$$

où ρ_1 est la résistivité des lacunes (en $\Omega \text{cm}/\text{at} \%$)

soit
$$\rho_d = 100 N^{-2/3} \rho_1 \quad (a)$$

Dans l'aluminium $N \simeq 6 \cdot 10^{22} \text{ at}/\text{cm}^3$. Si l'on prend pour ρ_1 à 4,2 K, la valeur donnée par SIMMONS et BALLUFFI [46] soit $\rho_1 = 3 \cdot 10^{-6} \Omega \text{cm}/\text{at} \%$, on trouve $\rho_d = 1,9 \cdot 10^{-19} \Omega \text{cm}^3$, en très bon accord avec les résultats expérimentaux. La règle empirique de ZIMAN est donc, dans ce cas, bien vérifiée.

On peut étendre cette règle, aux boucles de dislocations. En effet, COTTERILL [47] a mesuré la résistivité de boucles de lacunes, obtenues par recuit d'un échantillon d'aluminium trempé. Le diamètre D et la concentration C_b (cm^{-3}) de ces boucles déduits des observations de microscopie électronique permettent d'estimer la densité de dislocation $C_d = C_b \times \pi D$ et par conséquent

$$\rho_d = \frac{\Delta \rho_d}{C_d}$$

COTTERILL trouve ainsi $\rho_d = (7 \pm 2) 10^{-19} \Omega \text{cm}^3$ à 77 K pour $200 \text{ \AA} < D < 400 \text{ \AA}$. En portant cette valeur dans (a), on trouve $\rho_1 = (10 \pm 3) 10^{-6} \Omega \text{cm/at \%}$. Ce qui est un peu élevé, comparé à la valeur de SIMMONS et BALLUFFI à 4,2 K ($3 \cdot 10^{-6} \Omega \text{cm/at \%}$). Cependant compte tenu des erreurs possibles sur C_d , l'ordre de grandeur est respecté.

La règle empirique traduite par la relation (a) est donc correcte. Aussi l'appliquerons nous à l'uranium.

Dans ce métal $N = 4,8 \cdot 10^{22} \text{ at/cm}^3$. La résistivité d'une paire de Frenkel est de $20 \text{ à } 22 \mu \Omega \text{cm/at \%}$ (voir p.93), LUCASSON et WALKER [48], donnent $\rho_{P.F.} = (25 \text{ à } 30) 10^{-6} \Omega \text{cm/at \%}$. En admettant que $\rho_{P.F.} = \rho_i + \rho_1$ et que la résistivité des interstitiels est deux fois celle des lacunes ($\rho_i = 2\rho_1$), on prendra $\rho_1 = 10 \cdot 10^{-6} \Omega \text{cm/at \%}$. D'après (a) nous aurons donc :

$$\rho_d = 7,8 \cdot 10^{-19} \Omega \text{cm}^3$$

LETEURTRE [9] a examiné par microscopie électronique des échantillons d'uranium irradié à la température ordinaire, à différents taux de combustion. Il trouve pour :

- $\tau = 2 \text{ à } 4 \cdot 10^{-8}$, des boucles de $25 \text{ \AA}$ de diamètre en concentration $C_b = 6 \cdot 10^{16} \text{ boucles/cm}^3$ ce qui donne $C_d = 4,5 \cdot 10^{10} \text{ cm/cm}^3$.
- $\tau = 6 \cdot 10^{-7}$ $C_b = 6 \cdot 10^{16} \text{ boucles/cm}^3$ $D = 50 \text{ \AA}$
et $C_d = 9 \cdot 10^{10} \text{ cm/cm}^3$
- $\tau = 6 \cdot 10^{-6}$ $C_b = 2 \cdot 10^{16} \text{ boucles/cm}^3$ $D = 150 \text{ \AA}$
et $C_d = 9 \cdot 10^{10} \text{ cm/cm}^3$.

Remarquons la saturation de la densité de dislocation à partir de $\tau = 6 \cdot 10^{-7}$. C'est à peu près à cette valeur de τ que QUERE [18] trouve la saturation de la résistivité d'un fil d'uranium irradié à température ordinaire, soit

$$\Delta \rho = c^{te} = 5,5 \cdot 10^{-7} \Omega \text{cm pour } \tau > 6 \cdot 10^{-7}.$$

Si l'on se place à la saturation, on a :

$$\Delta \rho = \Delta \rho_d + \Delta \rho_i + \Delta \rho_l$$

A température ordinaire, la concentration en interstitiels est négligeable, donc

$$\Delta \rho_i \approx 0.$$

D'autre part $\Delta \rho_d = C_d \times \rho_d = 9 \cdot 10^{10} \text{ cm/cm}^3 \times 7,8 \cdot 10^{-19} \Omega \text{ cm}^3$

soit $\Delta \rho_d = 7 \cdot 10^{-8} \Omega \text{ cm}$

D'où $\Delta \rho_l = (55 - 7) \cdot 10^{-8} = 4,8 \cdot 10^{-7} \Omega \text{ cm}$

et $\Delta \rho_d / \Delta \rho_l \approx 15\%$.

Dans l'uranium irradié à température ordinaire, l'accroissement de résistivité dû aux lacunes libres est donc bien supérieur à celui dû aux boucles de dislocations. A basse température, où les interstitiels libres interviennent également, on peut dire que l'accroissement de résistivité est dû essentiellement aux défauts ponctuels. On peut même en première approximation négliger la résistivité des boucles.

III. 1. 2 - Contribution des défauts ponctuels.

Les défauts ponctuels créés par irradiation peuvent être sous forme de paires de Frenkel, d'interstitiels libres et de lacunes libres (nous reviendrons sur la nature de ces défauts au chapitre IV).

Nous désignons leur résistivité électrique
en $\Omega \text{ cm/at. } \%$ par

$$\begin{pmatrix} \rho_p \\ \rho_i \\ \rho_l \end{pmatrix}$$

En négligeant la résistivité des boucles, l'accroissement total de résistivité est la somme des accroissements due à chaque type de défaut :

$$\Delta \rho(\tau) = (\Delta \rho)_p + (\Delta \rho)_i + (\Delta \rho)_l$$

On a donc :

$$\Delta \rho(\tau) = 100 [\rho_p C_p(\tau) + \rho_i C_i(\tau) + \rho_l C_l(\tau)] \quad (3.2)$$

et en dérivant par rapport à τ

$$\mathcal{R}_i = \frac{d}{d\tau} \Delta \rho(\tau) = 100 [\rho_p p(\tau) + \rho_i i(\tau) + \rho_l l(\tau)] \quad (3.3)$$

Les courbes $\Delta \rho(\tau)$ sont donc de véritables courbes de production de défauts ponctuels, en fonction de la dose d'irradiation. Le fort accroissement de résistivité en début d'irradiation ($R_0 \rightarrow R_i \rightarrow 0,4$) prouve que les fissions laissent plus de défauts ponctuels à faibles doses qu'à fortes doses.

III.2 - FORMULES DE CROISSANCE.

Nous étudierons séparément le rôle des défauts ponctuels et des boucles de dislocation. Pour avoir les expressions globales décrivant la croissance, il suffira de faire la somme des expressions dues à chaque type de défauts.

III.2.1 - Cas des défauts ponctuels.

On sait que les défauts ponctuels induisent un changement de volume (ΔV) dans les métaux, proportionnel à leur volume de formation v_f et à leur concentration C [49]

$$\frac{\Delta V}{V} = C \frac{v_f}{v_{at}} \quad (v_{at} = \text{volume atomique}).$$

Pour beaucoup de métaux (c. f. c.) cet accroissement de volume est isotrope. Dans le cas de l'uranium à maille orthorombique on peut se demander si le volume de formation des défauts ponctuels est isotrope ?

La réponse est délicate car nous possédons peu de renseignements à ce sujet.

Parmi les interstitiels dissociés possibles, les directions $[010]$ et $[001]$ semblent les plus probables d'après les considérations stériques de JOUSSET [42]. La déformation serait donc plus forte dans ces deux directions, provoquant un léger écart à l'isotropie de v_{fi} . Cependant, un tel écart à l'isotropie n'a été évalué qu'à 20% pour des interstitiels dissociés dans le tungstène [50].

En première approximation nous admettrons donc l'hypothèse d'un gonflement⁽²⁾ isotrope dû aux défauts ponctuels dans l'uranium α . Ce gonflement

2) -----
On ne confondra pas ce type de gonflement, et le gonflement dû aux gaz de fission rassemblés en bulles aux très fortes irradiations et à hautes températures. La concentration en gaz de fission dans notre cas est de l'ordre de 10^{-6} ce qui est négligeable.

se traduit par une variation de longueur

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{1}{3} \frac{\Delta V}{V} .$$

Soit pour :

les paires de Frenkel $\left(\frac{\Delta L}{L} \right)_p = \frac{1}{3} h_p C_p$ avec $h_p = \frac{v_{fp}}{v_{at}}$

les interstitiels $\left(\frac{\Delta L}{L} \right)_i = \frac{1}{3} h_i C_i$ avec $h_i = \frac{v_{fi}}{v_{at}}$

les lacunes $\left(\frac{\Delta L}{L} \right)_l = \frac{1}{3} h_l C_l$ avec $h_l = \frac{v_{fl}}{v_{at}}$

(h_p , h_i , h_l sont positifs ou négatifs suivant que les volumes de formation donnent une expansion ou une contraction de volume).

Nous prendrons pour volume de formation d'une paire de Frenkel, la somme des volumes de formation des interstitiels et des lacunes ($v_{fp} = v_{fi} + v_{fl}$) soit :

$$h_p = h_i + h_l .$$

III. 2. 2 - Cas des boucles de dislocation.

Nous avons rappelé l'idée de BUCKLEY (dans l'introduction p. 2) selon laquelle l'allongement d'un monocristal suivant $[010]$ est dû aux boucles interstitielles de vecteur de Burgers (V.B.) $b_2 = \frac{1}{2} \langle 110 \rangle$ et le raccourcissement suivant $[100]$, aux boucles lacunaires de V.B. $b_1 = [100]$. Nous allons préciser le rôle de ces boucles.

Prenons un cristal d'uranium α orthorombique, de volume V , contenant $\mathcal{N}$ atomes et dont les trois côtés L_1 , L_2 et L_3 sont respectivement parallèles aux trois directions cristallographiques $[100]$, $[010]$ et $[001]$. La figure 27 représente une coupe du cristal parallèlement à la face (001) . Soit une boucle, contenant x interstitiels, dont le vecteur de Burgers b_2 est dans le plan de la feuille et dont la surface est S_2 . Cette boucle provoque un allongement local b_2 auquel correspond une augmentation de volume $b_2 \cdot S_2^*$. Si on admet qu'un interstitiel en boucle (ou une lacune) occupe un volume atomique (v_{at}), on peut écrire [11]

$$b_2 \cdot S_2 = x v_{at} \quad (b)$$

* Dans le cas particulier où S_2 est perpendiculaire à $\vec{b}_2$.

Dans la direction [010] :

L'allongement consécutif à la création de cette boucle est $b_2 \sin \Theta$ (Θ est l'angle entre le V.B. b et [100]) auquel correspond une augmentation de volume au-dessus de la face (010).

$$\begin{aligned}\Delta v_2 &= S_2 \sin \Theta \cdot b_2 \sin \Theta \\ &= b_2 \cdot S_2 \sin^2 \Theta \\ &= x v_{at} \sin^2 \Theta.\end{aligned}$$

Si N_{ib} est l'ensemble des interstitiels condensés dans des boucles de V.B. b_2 , l'augmentation de volume au-dessus de la face (010) est $N_{ib} v_{at} \sin^2 \Theta$, ce qui donne en divisant par la surface de la face (010), l'allongement dû aux boucles interstitielles dans la direction [010] :

$$\Delta L_2 = \frac{N_{ib} v_{at} \sin^2 \Theta}{L_1 L_3}$$

Comme $L_1 L_2 L_3 = V = N_{v_{at}}$

on a

$$\frac{\Delta L_2}{L_2} = \frac{N_{ib}}{N} \sin^2 \Theta = C_{ib} \sin^2 \Theta.$$

Dans la direction [100] :

On montre de même que l'allongement dû aux boucles interstitielles est :

$$(\Delta L_2 / L_2) = C_{ib} \cos^2 \Theta$$

et celui dû aux boucles lacunaires (affecté d'un signe négatif) :

$$\Delta L_1 / L_1 = - C_{lb}.$$

Dans la direction [001] :

Les deux vecteurs de Burgers b_1 et b_2 n'ont pas de composantes. La variation de longueur due aux boucles de dislocation est donc nulle dans cette direction.

Dans l'uranium $\Theta = 64^\circ$, soit $\sin^2 \Theta \simeq 0,8$ et $\cos^2 \Theta \simeq 0,2$. Pour des boucles induites par irradiation dans l'uranium, nous écrivons :

$$\begin{aligned}\Delta L/L(\tau)_{[100]} &= 0,2 C_{ib}(\tau) - C_{lb}(\tau) \\ \Delta L/L(\tau)_{[010]} &= 0,8 C_{ib}(\tau) \\ \Delta L/L(\tau)_{[001]} &= 0\end{aligned} \quad \begin{aligned} &) \\ &) \\ &) \end{aligned} \quad (3.4)$$

et en dérivant par rapport à τ

$$\begin{aligned} G_i [100] &= 0,2 i_b (\tau) - l_b (\tau) \\ G_i [010] &= 0,8 i_b (\tau) \\ G_i [001] &= 0 \end{aligned} \quad (3.5)$$

On voit que si $i_b = l_b$, $G_i [100] = -G_i [010] = -0,8 l_b$ résultats obtenus expérimentalement à fortes doses ($\tau > 6 \cdot 10^{-7}$ voir introduction).

III.2.3 - Contribution simultanée des boucles et des trous lacunaires.

LETEURTRE [9] a observé des trous lacunaires tridimensionnels, au microscope électronique, en plus des boucles de dislocation pour de fortes irradiations à température ordinaire.

Il faut donc ajouter la contribution de ces cavités à celle des boucles. Nous avons vu (page 65) que l'allongement dû aux lacunes peut s'écrire

$\Delta L/L (\tau) = \frac{1}{3} h_1 C_1 (\tau)$. En dérivant par rapport à τ on obtient le coefficient de croissance dans une direction quelconque $(G_i)_1 = \frac{1}{3} h_1 l (\tau)$.

Nous supposons qu'une lacune en cavité joue le même rôle qu'une lacune isolée, mais qu'elle provoque un gonflement isotrope de 1 volume atomique ($h_1 = 1$).

Si Y est le nombre de lacunes condensées en cavités par fission on peut écrire :

$$G_i [100] = G_i [010] = G_i [001] = \frac{Y}{3}$$

En appelant X le nombre de lacunes condensées en boucles $[100]$ et $(X + Y)$ le nombre d'interstitiels condensés en boucles $\frac{1}{2} \langle 110 \rangle$ par fission, on a d'après la relation 3.5 :

$$\begin{aligned} 0,2 (X + Y) - X + \frac{Y}{3} &= G_i [100] \\ 0,8 (X + Y) + \frac{Y}{3} &= G_i [010] \\ \frac{Y}{3} &= G_i [001] \end{aligned} \quad (3.6)$$

A forte doses, si l'on tient compte des cavités, la valeur absolue des coefficients de croissance, suivant $[100]$ et $[010]$ est différente et $G_i [001] \neq 0$.

Des expériences récentes de LOOMIS [10] donnent pour un monocristal irradié à 20 K ($\tau > 10^{-6}$).

$$G [100] = -30\,000 \quad G [010] = +47\,000$$

Avec ces deux valeurs, les deux premières équations du système (3.6) donnent :

$$X = 45\,000 \quad \text{et} \quad Y = 10\,000,$$

d'où $G_i [001] = \frac{Y}{3} = 3\,300$ ce qui est près de la valeur expérimentale 5 000.

Les hypothèses sur les cavités sont donc justifiées. Cependant, comme le nombre de lacunes en cavités par fission est faible par rapport au nombre de lacunes en boucle ($\frac{Y}{X+Y} \propto 20\%$) on pourra au premier ordre négliger le rôle des cavités.

III.2.4 - Cas d'un fil polycristallin.

Les équations 3.4 montrent que les variations de longueur d'un monocristal engendrées par les boucles sont très anisotropes. La variation de longueur dans l'axe Δ d'un fil polycristallin dépend donc de l'orientation de chaque grain et par conséquent de la texture. Dans le chapitre I, (page 23) nous avons signalé qu'il existait une relation linéaire entre les coefficients de croissance et de dilatation thermique mesurés dans l'axe Δ .

Cette relation a été établie, en supposant que l'orientation des grains a une symétrie de révolution autour de l'axe Δ , en négligeant les interactions grains à grains, et dans le cas particulier où $G [100] = -G [010] = -G$ (fortes doses).

Le fait d'utiliser des coefficients de croissance instantanés ne modifie en rien le raisonnement. On utilise donc la relation 1.5 en remplaçant g_Δ par G_i (voir en annexe II), soit :

$$\frac{G_i - g_2}{g_1} = \frac{\lambda_\Delta - \lambda_2}{\lambda_1} \quad (3.7)$$

$$\text{avec} \quad \lambda_1 = \beta - \frac{1}{2} (\alpha + \gamma) \quad , \quad \lambda_2 = \frac{1}{2} (\alpha + \gamma)$$

et dans ce cas plus général, en gardant la correspondance entre α , β , γ et $G_i [100]$, $G_i [010]$, $G_i [001]$,

$$\text{avec} \quad g_1 = G_i [010] - \frac{1}{2} G_i [100] \quad g_2 = \frac{1}{2} G_i [100] .$$

On a donc :

$$G_i = k G_i [010] + \frac{1-k}{3} (G_i [010] + G_i [100])$$

où k est le facteur de texture défini page 23 ($k = 0,94$ pour $UT\alpha$). On voit immédiatement que à forte doses, lorsque $G_i [100] = -G_i [010]$, on re-

trouve bien le coefficient de croissance mesuré dans l'axe Δ du fil

$$g_{\Delta} = k G_i [010] = G_i.$$

Le résultat obtenu peut se mettre sous une forme plus symétrique.

$$G_i = \frac{2k+1}{3} G_i [010] + \frac{1-k}{3} G_i [100] \quad (3.8)$$

et en groupant les relations 3.5 et 3.8 :

$$G_i = \frac{1,4k+1}{3} i_b(\tau) - \frac{1-k}{3} l_b(\tau) \quad (3.9)$$

En intégrant par rapport au taux d'irradiation, et en remarquant que $\Delta L/L(0)=0$, on trouve l'expression de la variation de longueur dans l'axe d'un fil polycristallin, due aux boucles de dislocations.

$$\Delta L/L(\tau) = \frac{1,4k+1}{3} C_{ib}(\tau) - \frac{1-k}{3} C_{lb}(\tau) \quad (3.10)$$

Dans le cas d'un fil à très forte texture $[010]$ ou d'un pseudo-monocristal quand l'axe Δ se confond avec l'axe $[010]$, $k=1$ et l'on retrouve bien l'expression

$$\Delta L/L(\tau) [010] = 0,8 C_{ib}(\tau) \quad \text{de (3.4).}$$

III.3 - CONCLUSIONS.

Formules globales.

Dans le cas où l'irradiation crée à la fois des défauts ponctuels et des boucles de dislocations, les variations de longueur et de résistivité d'un fil polycristallin d'uranium recuit ($UT\alpha$), ainsi que les coefficients instantanés en fonction du taux d'irradiation, sont donnés par :

$$\Delta L/L(\tau) = \frac{1}{3} h_p C_p(\tau) + h_i C_i(\tau) + h_l C_l(\tau) + 0,772 C_{ib}(\tau) - 0,02 C_{lb}(\tau) \quad (3.11)$$

$$G_i = \frac{1}{3} [h_p p(\tau) + h_i i(\tau) + h_l l(\tau) + 0,772 i_b(\tau) - 0,02 l_b(\tau)] \quad (3.12)$$

$$\Delta \rho(\tau) = 100 [\rho_p C_p(\tau) + \rho_i C_i(\tau) + \rho_l C_l(\tau)] \quad (3.13)$$

$$\mathcal{R}_i = 100 [\rho_p p(\tau) + \rho_i i(\tau) + \rho_l l(\tau)] \quad (3.14)$$

Si l'on tient compte de la résistivité des boucles de dislocations il faut ajouter un terme à l'expression de $\Delta \rho(\tau)$. Ce terme est de la forme $\rho_d [L_i(\tau) + L_l(\tau)]$ ou ρ_d est la résistivité de ligne de dislocation en ohm-cm^3 , $L_i(\tau)$ et $L_l(\tau)$

sont les longueurs totales de lignes de dislocations des boucles interstitielles et lacunaires.

Et dans le cas d'un monocristal :

$$\Delta L/L(\tau)_{[100]} = 1/3 \left[h_p C_p(\tau) + h_i C_i(\tau) + h_l C_l(\tau) \right] + 0,2 C_{ib}(\tau) - C_{lb}(\tau) \quad (3.15)$$

$$\Delta L/L(\tau)_{[010]} = 1/3 \left[h_p C_p(\tau) + h_i C_i(\tau) + h_l C_l(\tau) \right] + 0,8 C_{ib}(\tau) \quad (3.16)$$

$$G_i(\tau)_{[100]} = 1/3 \left[h_p p(\tau) + h_i i(\tau) + h_l l(\tau) \right] + 0,2 i_b(\tau) - l_b(\tau) \quad (3.17)$$

$$G_i(\tau)_{[010]} = 1/3 \left[h_p p(\tau) + h_i i(\tau) + h_l l(\tau) \right] + 0,8 i_b(\tau) \quad (3.18) .$$

Conséquences :

Quelles sont les conséquences immédiates de ces formules et des résultats expérimentaux ?

- Cas de UT α irradié à basse température.

1°) L'accroissement de résistivité est saturé pour $\tau > 5$ à $6 \cdot 10^{-7}$.

C'est-à-dire que la pente de la courbe $\Delta \rho(\tau)$ est pratiquement nulle, ce qui se traduit en se reportant à la relation 3.14, par l'équation :

$$\rho_p p(\tau) + \rho_i i(\tau) + \rho_l l(\tau) = 0 \quad (3.19)$$

dont la solution la plus raisonnable est $p(\tau) = i(\tau) = l(\tau) = 0$. En effet, si au début de l'irradiation les fissions laissent beaucoup de défauts ponctuels, au bout d'un certain temps les fissions se produisent dans des régions déjà endommangées par de tels défauts et la chaleur dégagée dans les pointes thermiques de ces fissions favorise leur recombinaison (recuit de paires de Frenkel, migration d'interstitiels sur des boucles voisines etc...). Plus l'irradiation se poursuit, plus les fissions recombinent les défauts ponctuels. Un équilibre est atteint lorsqu'une fission recombine autant de défauts ponctuels qu'elle en crée. Et quand chaque fission ne laisse plus de défauts ponctuels supplémentaires ($p(\tau) = 0$, $i(\tau) = 0$ et $l(\tau) = 0$) la saturation de la résistivité est atteinte.

2°) Par contre la variation de longueur ne se sature pas, même aux fortes doses. $\Delta L/L(\tau)$ devient linéaire ($G_i = c^{te}$) à partir de $\tau = 6 \cdot 10^{-7}$. Les fissions apportent donc des défauts supplémentaires qui ne peuvent être que des interstitiels et lacunes condensés en boucles. Le coefficient de crois-

sance s'écrit alors d'après 3.12 et 3.19 pour $\tau > 6 \cdot 10^{-7}$:

$$G_i = 0,772 \ i_b(\tau) - 0,02 \ l_b(\tau) = C^{te} \quad (3.20)$$

et, $i_b(\tau)$ et $l_b(\tau)$ doivent être constants.

De plus les expériences sur les monocristaux ont toujours montré - en première approximation si l'on néglige le rôle des cavités pour les expériences de LOOMIS - que $G_i [100] = - G_i [010] = - G$, ce qui est vrai pour $i_b(\tau) = l_b(\tau)$ d'après (3.5).

On explique donc la croissance linéaire aux fortes doses par la précipitation en boucles de dislocations de tous les défauts nouvellement créés par les fissions, chacune d'elles condensant un nombre constant d'interstitiels en boucles de V.B. $1/2 \langle 110 \rangle$ et un même nombre de lacunes en boucles de V.B. $[100]$.

$$\text{à } \tau > 6 \cdot 10^{-7} \text{ on a } i_b(\tau) = l_b(\tau) = C^{te}.$$

et on trouve expérimentalement dans le cas de UT α irradié à 4,6 K :

$$G_i = 26\,000$$

D'où le résultat suivant en tenant compte de (3.20):

$$0,772 \ i_b(\tau) - 0,02 \ l_b(\tau) = 26\,000$$

$$\text{Soit } i_b(\tau) = l_b(\tau) = 34\,600.$$

3°) Supposons que $h_i \simeq 1$ ce qui est raisonnable. La relation (3.12) montre alors que la contribution à la croissance est de $1/3$ pour un interstitiel libre et de 0,772 pour un interstitiel en boucle. Ainsi au bout d'un certain temps lorsque lors d'une fission la condensation en boucles d'interstitiels libres devient notoire, le coefficient de croissance augmente. Il semble que cette situation se produise à un taux d'irradiation correspondant au premier point d'inflexion des courbes $\Delta L/L(\tau)$.

De même si la condensation de lacunes en boucles se fait au détriment de lacunes libres, $l(\tau)$ diminue et $l_b(\tau)$ augmente ce qui entraîne une diminution de G_i . On peut donc déjà expliquer le deuxième point d'inflexion par une condensation importante des lacunes en boucles.

4°) La figure (16) montre que de brusques changements de flux instantanés - jusqu'à un facteur 10 - au cours de l'irradiation de UT α à 4,6 K, ne

modifient pas la pente des courbes $\Delta L/L(\tau)$ et $\Delta \rho(\tau)$. C'est-à-dire que G_i et $\mathcal{R}_i$ sont indépendants de la vitesse de production des fissions. Par conséquent le nombre de défauts laissés par une fission à un instant i - proportionnel à G_i et $\mathcal{R}_i$ d'après 3.12 et 3.14 - ne varie pas pendant le temps qui sépare cette fission de la suivante. On peut donc dire que les défauts ne migrent pas thermiquement en dehors des pointes de fission, pendant une irradiation à 4,6 K et que le processus de croissance est athermique à cette température.

C'est pourquoi nous nous intéresserons surtout aux résultats concernant UT α irradié à 4,6 K.

Chapitre IV

INTERPRETATION DES RESULTATS.

Les formules établies au chapitre précédent ne permettent d'interpréter les variations de longueur et de résistivité de l'uranium irradié, que si l'on connaît la variation des différentes concentrations de défauts en fonction du taux d'irradiation. On peut avoir une idée de la nature et de la répartition spatiale de ces défauts créés par les fissions. Pour cela rappelons quelques résultats concernant les "dégâts" causés par les fissions dans l'uranium.

On sait que la fission par un neutron d'un atome d'uranium, en deux fragments de fissions, dégage une énergie de 162 MeV ; à raison de 67 MeV pour le fragment lourd ($Z = 53$, $M = 139$) et de 95 MeV pour le fragment léger ($Z = 29$, $M = 95$). Une partie constante ν de cette énergie est cédée au réseau sous forme de chocs atomiques, LINDHARD [51] trouve :

$$\nu = (8,7 \pm 2,7) \text{ MeV}.$$

Soit environ 5 MeV pour le fragment lourd et 3 MeV pour le fragment léger. Ces chocs atomiques créent les défauts qui nous intéressent.

D'après KINCHIN et PEASE [52] le nombre d'atomes déplacés de leur site au cours d'une fission est $\frac{\nu}{2 E_d}$, où E_d est l'énergie seuil de déplacement. Pour beaucoup de métaux E_d est de l'ordre de 25 eV, ce qui donne environ 175 000 atomes déplacés (ou paires de Frenkel) par fission. On ne connaît pas E_d pour l'uranium. Cependant le réseau de ce métal étant peu compact on peut estimer E_d à 15 eV [11], ce qui donnerait 300 000 atomes déplacés par fission.

Une partie de ces défauts se recombine immédiatement, d'après le concept de pointe de déplacement de BRINKMAN [53]. Chaque fission crée donc un nombre de défauts bien inférieur à 300 000.

Comment se répartissent les défauts ?

Un fragment de fission frappe un atome primaire qui est éjecté de son site et à son tour frappe un autre atome, ce qui donne une cascade de collisions. Le taux de perte d'énergie d'un primaire a une valeur maximale aux faibles énergies [51], c'est-à-dire quand le primaire est suffisamment ralenti en fin de parcours. La région endommagée sur la fin de son trajet est donc riche en défauts, on l'appelle : "cascade de déplacements".

De telles cascades de déplacements ont été soit décrites par BUCKLEY [6], soit calculées par VINEYARD [54], BEELER [55-56] (figure 28), ou TORRENS [57].

Elles sont constituées d'une zone centrale lacunaire où les lacunes sont plus ou moins agglomérées et d'un nuage d'interstitiels périphériques. D'autre part sur tout le trajet d'un primaire, avant la cascade de déplacement, l'énergie dissipée est faible, les défauts créés sont des paires de Frenkel plus ou moins proches. A très basse température ces paires peuvent être stables.

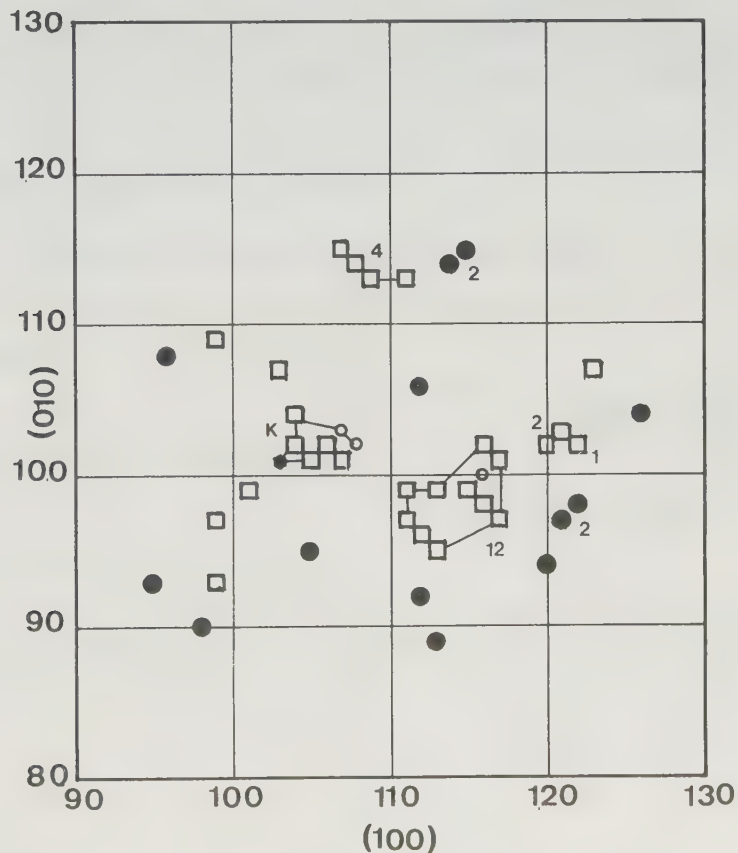


Figure 28 - Emplacement des défauts dans une cascade de déplacements d'après les calculs de BEELER (les carrés blancs représentent les lacunes, les carrés noirs les interstitiels).

IV.1 - MODELE.

Ces considérations générales et les conséquences de nos résultats expérimentaux (chapitre III, p. 71) justifient l'énoncé de certaines hypothèses concernant la création et l'évolution des défauts créés par irradiation à basse température dans l'uranium recuit ($UT\alpha$).

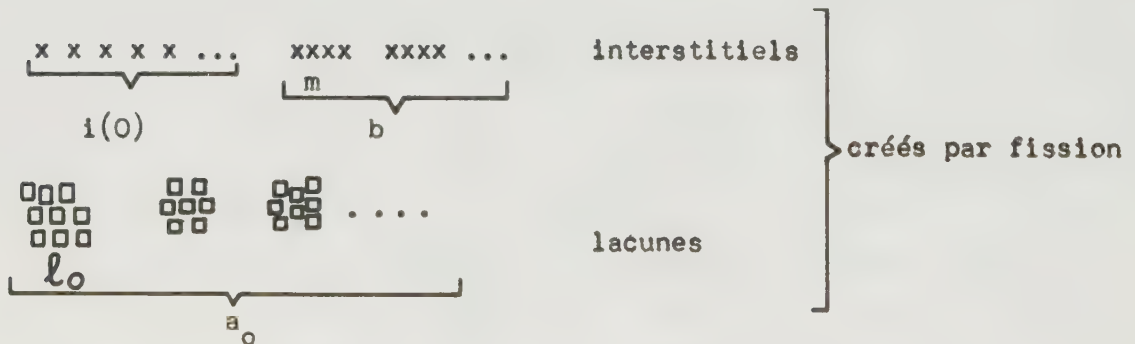
Ces hypothèses constitueront la base de notre modèle d'interprétation.

IV.1.1 - Nature et création des défauts.

Nous admettrons que chaque fission crée :

- des lacunes en zone où elles se comportent comme des lacunes libres en ce qui concerne le gonflement,
- des interstitiels en "nuage" autour des zones lacunaires sous forme d'interstitiels libres et de très petites boucles de dislocation (germes de boucles),
- des paires de Frenkel plus ou moins proches.

De plus, chaque fission transmettant au réseau une énergie constante ν , sous forme de chocs atomiques, nous admettrons que le taux de création des défauts est constant au cours de l'irradiation à une température donnée.



Défauts créés par fission. Définition des lettres employées

Figure 29 - Schéma représentant le taux de création de défauts avec les notions utilisées.

Cette hypothèse constitue en fait une approximation, car il n'est pas certain que le nombre de défauts créé en début d'irradiation - dans un réseau vierge - soit le même en fin d'irradiation - dans un réseau très perturbé.

A un instant quelconque de l'irradiation, le nombre de défauts laissé par une fission ($p(\tau)$, $i(\tau)$, $l(\tau) \dots$ etc), en raison des réarrangements possibles entre eux, est différent du nombre créé par la première fission.

Nous dirons donc, d'après nos notations, que chaque fission crée :

- $p(o)$ paires de Frenkel plus ou moins proches,
- $i(o)$ interstitiels libres,
- $l(o)$ lacunes dans a_o zones de l_o lacunes chacune ($l(o) = a_o l_o$),
- $i_b(o)$ interstitiels condensés dans b germes de boucles contenant chacun m interstitiels ($i_b(o) = m b$),

On suppose qu'il n'y a pas de lacunes en boucles à faibles doses ($l_b(o) = 0$).

La figure 29 schématise ces hypothèses sur la création de défauts uniforme au cours du temps d'irradiation. Nous supposons qu'une fission crée autant de lacunes que d'interstitiels puisque la formation des uns entraîne celle des autres. D'où la relation :

$$l(o) = i(o) + i_b(o) = i(o) + m b \quad (4.1)$$

La création totale de défauts est équivalente à la formation de $p(o) + l(o)$ paires de Frenkel par fission, et l'on doit avoir :

$$p(o) + l(o) < 300\,000 \quad (4.2)$$

d'après la relation de KINCHIN et PEASE.

IV. 1.2 - Evolution des défauts.

Les hypothèses que nous admettrons quant à l'évolution des défauts au cours de l'irradiation permettront d'exprimer la variation de concentration des différents types de défauts en fonction de la dose d'irradiation.

IV. 1.2.1 - Cas des interstitiels.

L'augmentation du nombre d'interstitiels condensés en boucles par chaque fission aux dépens des interstitiels libres peut expliquer le premier point d'inflexion des courbes $\Delta L/L(\tau)$ comme nous l'avons signalé au chapitre III (p. 72).

Nous dirons donc que les germes de boucles croissent par absorption d'interstitiels libres. Ces derniers à très basses températures sont supposés ne migrer qu'à la faveur des pointes thermiques accompagnant l'irradiation (croissance athermique, voir p.73). D'où l'hypothèse suivante :

- l'absorption d'interstitiels libres sur les boucles interstitielles est proportionnelle à leur concentration volumique et à la longueur totale des boucles.

On peut écrire la variation du nombre $N_i(\tau)$ d'interstitiels libres par cm^3 dans l'intervalle $\tau, \tau + d\tau$ correspondant à $N d\tau$ fissions ;

c'est-à-dire le nombre d'interstitiels créé diminué du nombre d'interstitiels absorbés par les boucles :

$$d N_i(\tau) = i(o) N d\tau - K N_i(\tau) L_i(\tau) \cdot N d\tau$$

où K est la constante d'absorption des boucles et $L_i(\tau)$ la longueur totale des boucles interstitielles par cm^3 . On en déduit la variation de la concentration atomique.

$$i(\tau) = \frac{d}{d\tau} C_i(\tau) = i(o) - N K L_i(\tau) C_i(\tau) \quad (4.3)$$

Quant à la concentration volumique $N_{ib}(\tau)$ des interstitiels en boucles, - interstitiels absorbés + interstitiels en boucle lors de leur création - elle est donnée par :

$$d N_{ib}(\tau) = K N_i(\tau) L_i(\tau) N d\tau + m b N d\tau .$$

soit :

$$i_b(\tau) = \frac{d}{d\tau} C_{ib}(\tau) = m b + N K L_i(\tau) C_i(\tau) \quad (4.4)$$

On peut déjà remarquer que :

$$i(\tau) + i_b(\tau) = i(o) + m b = l(o) .$$

D'autre part en début d'irradiation, lorsque $C_i(\tau)$ et $L_i(\tau)$ sont faibles - à condition que $m b$ soit petit - on a pratiquement :

$$i(\tau) \simeq i(o) \quad \text{et} \quad i_b(\tau) \simeq m b$$

$$\text{d'où} \quad C_i(\tau) \simeq i(o)\tau \quad \text{et} \quad C_{ib}(\tau) \simeq m b \tau .$$

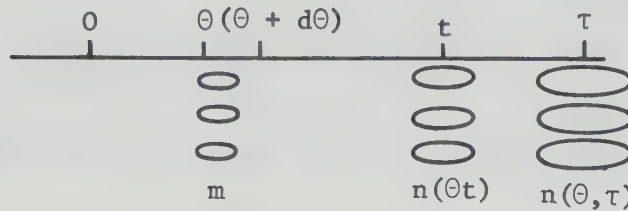
Au cours de l'irradiation, le nombre de boucles ainsi que la concentration d'interstitiels libres augmentent. Le terme $N K L_i(\tau) C_i(\tau)$ croît et $i(\tau)$

décroît pour devenir nul et peut être même négatif, auquel cas $C_i(\tau)$ passerait par un maximum avant de décroître. On peut donc s'attendre à ce que $C_i(\tau)$ tende vers une valeur limite suffisamment basse pour que les boucles ne puissent plus absorber que les interstitiels libres nouvellement créés.

C'est-à-dire que :

- à fortes doses :

$$\begin{aligned} i(\tau) &\simeq 0 & \text{et} & \quad i_b(\tau) \simeq i(0) + m b = l(0) \\ C_i(\tau) &\simeq C^{te} & \text{et} & \quad C_{ib}(\tau) \simeq l(0) \tau + C^{te} . \end{aligned}$$



Evolution des boucles interstitielles au cours du "temps"

Figure 30 - Schéma représentant la croissance des boucles interstitielles.

La résolution de ces équations implique la connaissance de la variation de longueur de boucles $L_i(\tau)$ en fonction du taux d'irradiation. Considérons, pour cela, les $b N d \Theta$ boucles interstitielles créées entre les "temps" Θ et $\Theta + d \Theta$ (figure 30). Elles contiennent chacune au temps t ($t > \Theta$), $n(\Theta, t)$ interstitiels et ont une longueur $l(\Theta, t)$ telle que :

$$l(\Theta, t) = \lambda \sqrt{n(\Theta, t)} .$$

On a posé $\lambda = 2 \sqrt{\pi \sigma} \simeq 10^{-7}$ cm, où $\sigma = 9,15 \cdot 10^{-16}$ cm² est la surface atomique dans le plan des boucles. On peut écrire :

$$d n(\Theta, t) = K N_i(t) \cdot \lambda \sqrt{n(\Theta, t)} \cdot N d t$$

où K et N_i ont la même signification que précédemment soit donc :

$$\begin{aligned} n(\Theta, \tau) &= m + K \lambda N \int_{\Theta}^{\tau} N_i(t) \sqrt{n(\Theta, t)} dt \\ &= m + K \lambda N^2 \int_{\Theta}^{\tau} C_i(t) \sqrt{n(\Theta, t)} dt \end{aligned} \quad (4.5)$$

$n(\Theta, \tau)$ ne dépend de Θ et τ que par $(\tau - \Theta)$ âge de la boucle. A la naissance une boucle contient $n(\Theta, \Theta) = m$ interstitiels. Le nombre total d'interstitiels en boucles par volume unité, au moment τ , est :

$$N_{ib}(\tau) = b N \int_0^{\tau} n(\Theta, \tau) d\Theta$$

soit :

$$C_{ib}(\tau) = b \int_0^{\tau} n(\Theta, \tau) d\Theta \quad (4.6)$$

(On peut utiliser cette équation ou bien l'équation 4.4).

La longueur totale de boucles interstitielles par unité de volume est donnée par

$$L_i(\tau) = b \lambda N \int_0^{\tau} \sqrt{n(\Theta, \tau)} d\Theta \quad (4.7)$$

Il faut donc résoudre le système formé par les équations 4.7, 4.6, 4.5, 4.3 ; pour connaître $C_i(\tau)$ et $C_{ib}(\tau)$. En particulier ce système conduit à la résolution d'une équation différentielle du second ordre, non linéaire et non homogène, ce qui peut se faire numériquement par ordinateur.

IV. 1.2.2 - Cas des lacunes.

Nous avons vu que l'on pouvait également expliquer le deuxième point d'inflexion des courbes $\Delta L/L(\tau)$ par une condensation retardée des lacunes en boucles (p.72). Cette explication est d'ailleurs confirmée par des résultats de LOOMIS [10] qui montrent que la décroissance dans la direction [100] d'un monocristal, n'apparaît qu'après un certain temps d'incubation ($\tau \approx 4.10^{-7}$, voir figure 35).

Pour rendre compte de cette incubation, nous reprendrons ici une hypothèse de LETEURRE [11] selon laquelle les zones lacunaires ne peuvent s'effondrer en boucles que si deux d'entr'elles sont créées successivement à proximité l'une de l'autre. Cette proximité s'exprime par un volume d'effondrement v_a .

La probabilité de formation des boucles lacunaires est alors pratiquement nulle en début d'irradiation et ne devient notable qu'au bout d'un certain temps d'irradiation.

D'où la variation de concentration volumique en zones lacunaires $A(\tau)$:

$$dA(\tau) = a_o N d\tau - 2 A(\tau) v_a a_o N d\tau .$$

En multipliant par l_o nombre de lacunes composant une zone, et en posant $a_o v_a = V_1$ (volume de toutes les zones d'une fission) on a la variation de la concentration volumique $N_1(\tau)$ de lacunes en zones :

$$dN_1(\tau) = l(o) N d\tau - 2 N_1(\tau) V_1 N d\tau$$

soit :

$$\frac{d}{d\tau} C_1(\tau) = l(\tau) = l(o) - 2 N V_1 C_1(\tau) .$$

Avec la condition initiale $C_1(o) = 0$, l'intégration donne :

$$C_1(\tau) = \frac{l(o)}{2 N V_1} \left[1 - \exp(-2 V_1 N \tau) \right] \quad (4.8)$$

La variation du nombre de boucles lacunaires par unité de volume est :

$$dB(\tau) = A(\tau) v_a a_o N d\tau .$$

En multipliant par $2 l_o$ nombre de lacunes à l'intérieur d'une boucle, la variation de concentration volumique de lacunes en boucles est donnée par :

$$dN_{1b}(\tau) = 2 N_1(\tau) V_1 N d\tau$$

d'où la concentration atomique :

$$\frac{d}{d\tau} C_{1b}(\tau) = l_b(\tau) = 2 N V_1 C_1(\tau) .$$

Par intégration, avec la condition $C_{1b}(o) = 0$, on a :

$$C_{1b}(\tau) = l(o) \tau - \frac{l(o)}{2 N V_1} \left[1 - \exp(-2 V_1 N \tau) \right] \quad (4.9)$$

On voit immédiatement que l'on a toujours :

$$l(\tau) + l_b(\tau) = l(o)$$

- A faibles doses, quand τ est très petit, pour un volume V_1 donné on a au premier ordre :

$$l(\tau) \simeq l(o) \quad C_1(\tau) \simeq l(o) \tau$$

$$\text{et} \quad l_b(\tau) \simeq 0 \quad C_{1b}(\tau) \simeq 0$$

- Aux fortes doses, pour τ suffisamment grand compte tenu de V_1 :

$$\begin{aligned} l(\tau) &\rightarrow 0 & C_1(\tau) &\rightarrow \frac{l(o)}{2 N V_1} \\ l_b(\tau) &\rightarrow l(o) & C_{1b}(\tau) &\rightarrow l(o) \tau - C^{te} \end{aligned}$$

Nous avons vu dans le cas des interstitiels, que $i_b(\tau)$ tend vers $l(o)$. Aux fortes doses on a donc :

$$l_b(\tau) = i_b(\tau) = l(o) \quad \text{et} \quad i(\tau) \simeq l(\tau) \simeq 0$$

ce qui est la condition de croissance linéaire (voir pages 71-72).

IV. 1. 2. 3 - Cas des paires de Frenkel.

Nous supposons que la chaleur dégagée par une fission est comprise dans un volume V centré sur la pointe thermique et limité par une surface isotherme.

Ainsi lors d'une fission, le recouvrement de paires par le volume V , entraîne leur élimination et le nombre de paires recuites est proportionnel à leur concentration. Le volume de recuit est d'autant plus grand que la stabilité des paires est faible. Au bout d'un certain temps d'irradiation, il y a équilibre entre la création et la disparition d'un certain type de paires définies par leur stabilité et dont la concentration est alors stationnaire. Ces paires n'apportent plus leur contribution au coefficient de croissance ($\frac{d}{d\tau} C_p(\tau) = 0$). On explique ainsi le changement de pente à 4,6 K des courbes $G_i(\tau)$ et $R_i(\tau)$ ou $G_i(\Delta L/L)$ et $R_i(\Delta \rho)$ (figures 21 ou 24 et 25) correspondant à $\tau = 4.10^{-9}$, par la saturation des paires très proches de plus faible stabilité et de volume de recuit relativement grand.

La concentration volumique $N_p(\tau)$ de paires de Frenkel obéit alors à :

$$d N_p(\tau) = p(o) N d\tau - N_p(\tau) V N d\tau.$$

et la concentration atomique, à :

$$p(\tau) = \frac{d}{d\tau} C_p(\tau) = p(o) - N V C_p(\tau)$$

d'où

$$C_p(\tau) = \frac{p(o)}{N V} [1 - \exp(-V N \tau)] \quad (4.10)$$

Pour des paires de stabilité différente - donc pour des volumes de recuit différents - on écrira :

$$C_p(\tau) = \sum_i C_{pi}(\tau)$$

avec
$$C_{pi}(\tau) = \frac{p_i(o)}{N V_i} [1 - \exp(-N V_i \tau)] \quad (4.11)$$

En pratique nous nous contenterons de $i = 1$ (paires très proches peu stables) et $i = 2$ (paires moins proches) avec $V_2 < V_1$.

IV. 1.3 - Résumé du modèle et discussion.

Le modèle de croissance repose donc sur les quatre hypothèses que nous résumons ici.

1°) A une température d'irradiation donnée, création constante par fission de :

$p(o)$: paires de Frenkel plus ou moins proches,

$i(o)$: interstitiels libres,

$l(o)$: lacunes en zones,

b germes de boucles de m interstitiels

avec la relation $l(o) = i(o) + m b$.

2°) Croissance des boucles interstitielles proportionnelle à la concentration volumique d'interstitiels libres et à la longueur totale $L_i(\tau)$ des boucles par unité de volume.

3°) Germination de boucles lacunaires par superposition de deux zones lacunaires à l'intérieur d'un volume v_a .

4°) Existence par fission d'un volume V de recuit des paires de Frenkel.

Ces hypothèses conduisent aux équations constituant le système suivant :

$$n(\Theta, \tau) = 2,471 \cdot 10^{38} K \int_0^\tau C_i(t) \sqrt{n(\Theta, t)} dt$$

$$L_i(\tau) = 5,148 \cdot 10^{15} b \int_0^\tau \sqrt{n(\Theta, \tau)} d\Theta$$

$$\frac{d}{d\tau} C_i(\tau) = i(o) - 4,8 \cdot 10^{22} K L_i(\tau) C_i(\tau)$$

$$C_{ib}(\tau) = b \int_0^\tau n(\Theta, \tau) d\Theta$$

$$\frac{d}{d\tau} C_1(\tau) = 1(o) - 9,6 \cdot 10^{22} V_1 C_1(\tau)$$

$$\frac{d}{d\tau} C_{1b}(\tau) = 9,6 \cdot 10^{22} V_1 C_1(\tau)$$

$$1(o) = i(o) + m b$$

$$C_p(\tau) = \sum_i \frac{P_i(o)}{N V_i} \left[1 - \exp(-V_i N \tau) \right]$$

(où $N = 4,8 \cdot 10^{22} \text{ at/cm}^3$).

L'analyse de ces équations permet de dégager aux faibles et fortes doses les points importants rassemblés dans le tableau II.

Rappelons que les hypothèses faites sur la texture $[010]$ de nos fils d'uranium polycristallin - texture de révolution autour de l'axe Δ du fil et interactions de grain à grain négligeables - conduisent à une relation linéaire entre G_i et la dilation thermique λ_Δ qui s'écarte au maximum de 20 % des résultats expérimentaux de BUCKLEY [36] (la figure 31 montre qu'il y a un écart de 5% pour $\lambda_\Delta = 2 \cdot 10^{-7}$ cas de $UT\alpha$, et de 15% pour $\lambda_\Delta = 6 \cdot 10^{-6}$ cas de UTe).

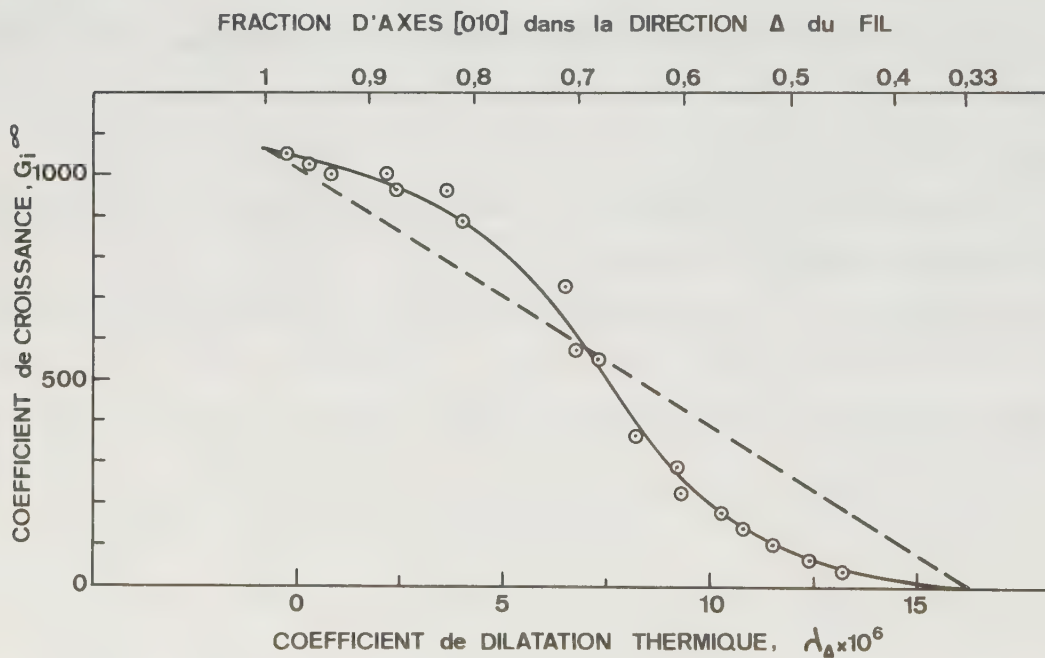


Figure 31 - Comparaison des résultats expérimentaux de BUCKLEY avec la droite théorique $G_i = f(\lambda_\Delta)$.

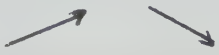
Fonctions de z	$z = 0$	z petit	z moyen	z grand
$L_i(z)$	0	$\simeq 0$		$A\tau + B$
$C_i(z)$	0	$\simeq i(0) z$		constante
$NKL_i(z) C_i(z)$	0	$\simeq 0$		$i(0)$
$i(z)$	$i(0)$	$\simeq i(0)$	$+\rightarrow 0 \rightarrow -$	0
$i_b(z)$	$i_b(0) = mb$	$\simeq mb$		$i(0) + mb = l(0)$
$C_{ib}(z)$	0	$\simeq mb z$		$(i(0) + mb)\tau + C^{te}$
$C_l(z)$	0	$\simeq l(0) z$		$\frac{l(0)}{2 N V_1}$
$l(z)$	$l(0)$	$\simeq l(0)$		0
$l_b(z)$	0	$\simeq 0$		$l(0)$
$C_{lb}(z)$	0	$\simeq 0$		$l(0)\tau$
$p(z)$	$p(0)$		0	0
$C_p(z)$	0		$\frac{p_1(0)}{N V_1} + \frac{p_2(0)}{N V_2} = C^{te}$	constante

TABLEAU II

Nous avons ainsi justifié le choix de toutes les hypothèses posées. Nous verrons qu'elles conduisent à des résultats en bon accord avec l'expérience.

On notera ici que par souci de simplicité nous avons négligé les annihilations sous irradiation et notamment :

- la formation d'un interstitiel dans une zone lacunaire ou une région contenant des boucles lacunaires,
- la formation d'une zone lacunaire dans une région contenant des interstitiels libres ou des boucles interstitielles.

Ces contributions conduiraient à des équations différentielles du second ordre, non linéaires, non homogènes, peu maniables numériquement.

IV. 1. 4 - Résultats numériques.

Il suffit d'ajuster les paramètres b , m , K , V_1 , $l(o)$, h_i , h_e par ordinateur et les paramètres $p_1(o)$, $p_2(o) \dots$, V_1 , $V_2 \dots$ (voir annexe III), de manière que les concentrations de défauts obtenues donnent (d'après la relation 3.11) une courbe $\Delta L/L(\tau)$ théorique superposée à la variation expérimentale de longueur. De la qualité de la superposition dépendra la validité du modèle.

IV. 1. 4. 1 - Variations de longueur de $UT\alpha$ irradié à 4,6 K.

On trouve une très bonne superposition des courbes $\Delta L/L(\tau)$ théorique et expérimentale (figure 32) pour les valeurs suivantes des paramètres :

- | | |
|-------------|---|
| $l(o)$ | = 34 600 lacunes en zones créées par fission, |
| V_1 | = 6.10^{-17} cm^3 le volume des zones lacunaires d'une fission, |
| b | = 100 germes de boucles interstitielles créés par fission, |
| m | = 15 interstitiels par germe de boucle, |
| d'où $i(o)$ | = 33 100 interstitiels libres créés par fission, |
| K | = 9.10^{-29} cm^5 la constante d'absorption des interstitiels |
- libres par les boucles interstitielles,

$$v_{fi} = h_i v_{at} = + 1 \text{ volume atomique}$$

$$v_{fl} = h_l v_{at} = + 0,5 \text{ volume atomique}$$

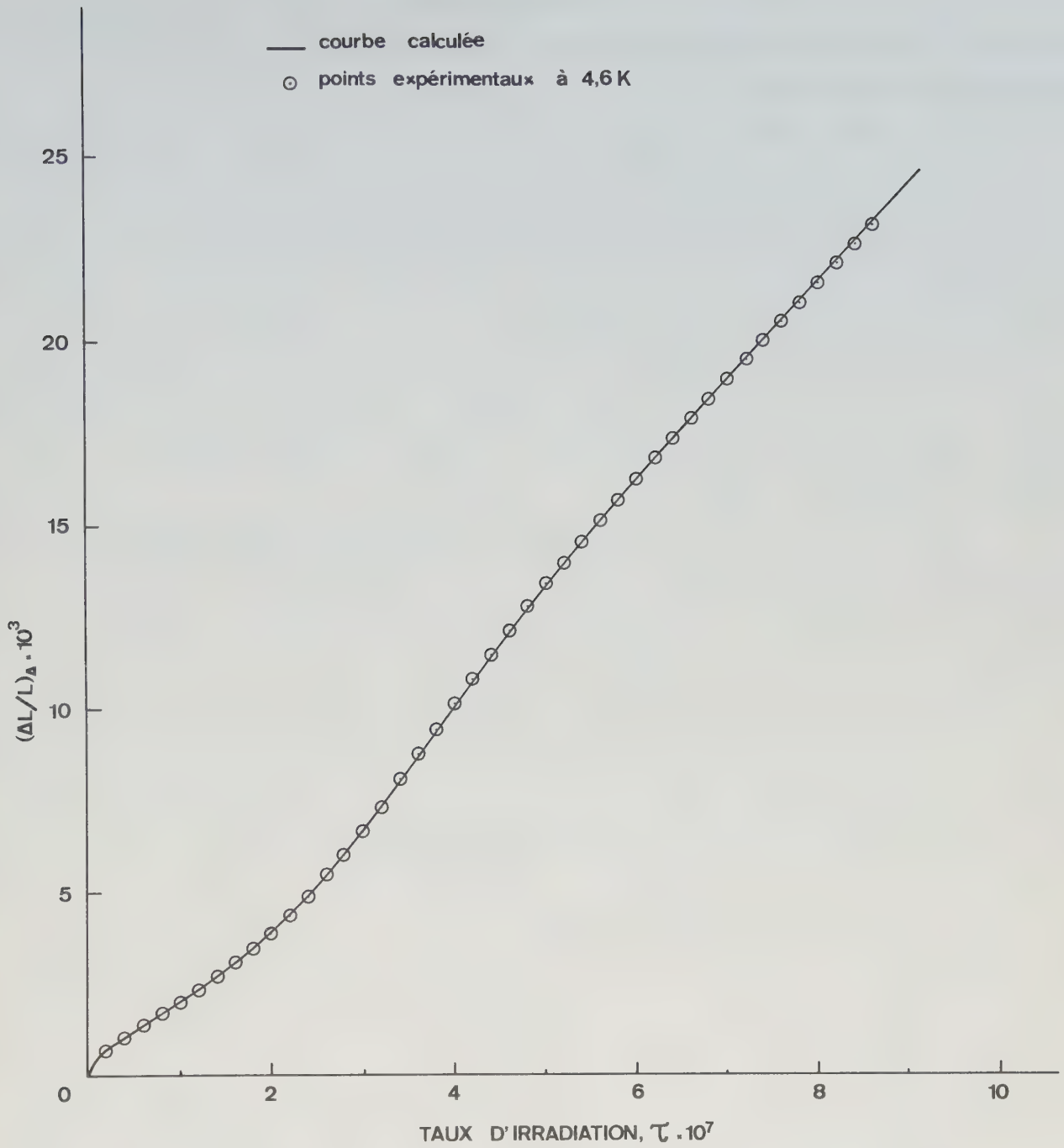


Figure 32 - Courbe $\Delta L/L(\tau)$ théorique et points expérimentaux dans le cas de $UT\alpha$ irradié à 4,6 K.

$$v_{fp} = (h_i + h_l) v_{at} = + 1,5 \text{ volume atomique.}$$

Enfin les paires de Frenkel se divisent en deux catégories de stabilité différentes (voir l'annexe III).

- des paires très proches :

$$p_1(o) = 80\,000 \text{ paires créées par fission,}$$

$$V_1 = 8,3 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^3 \text{ leur volume de recuit par fission.}$$

- des paires moins proches :

$$p_2(o) = 49\,000 \text{ paires créées par fission,}$$

$$V_2 = 2 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^3 \text{ leur volume de recuit par fission.}$$

$$\text{Soit : } p(o) = p_1(o) + p_2(o) \simeq 130\,000 \quad \text{et} \quad p(o) + l(o) \simeq 165\,000$$

ce qui est conforme à l'inégalité 4.2.

Les figures 33 et 34 montrent les variations de concentration en fonction de τ des différents types de défauts. En particulier :

- la concentration de saturation des paires très proches est de :

$$2 \cdot 10^{-4} \text{ pour } \tau \simeq 4 \cdot 10^{-9},$$

- la concentration de saturation des paires moins proches est de :

$$5,1 \cdot 10^{-4} \text{ pour } \tau \simeq 5 \cdot 10^{-8}.$$

- la concentration saturée en paires de Frenkel est donc :

$$C_p = C_{p1} + C_{p2} = 7,1 \cdot 10^{-4}.$$

- quand la croissance devient linéaire ($\tau = 6 \cdot 10^{-7}$), on a :

$$C_p = 7,1 \cdot 10^{-4}; C_i = 1,8 \cdot 10^{-3}; C_l = 5,8 \cdot 10^{-3}; C_{ib} = 1,89 \cdot 10^{-2}; C_{lb} = 1,49 \cdot 10^{-2}$$

- en fin d'irradiation ($\tau = 8,6 \cdot 10^{-7}$) on a :

$$C_p = 7,1 \cdot 10^{-4}; C_i = 1,15 \cdot 10^{-3}; C_l = 5,95 \cdot 10^{-3}; C_{ib} = 2,96 \cdot 10^{-2}; C_{lb} = 2,38 \cdot 10^{-2}.$$

En introduisant, les différentes concentrations calculées en fonction de τ , dans les relations 3.15 et 3.16, on trouve l'allongement qu'aurait un monocristal dans les directions $[100]$ et $[010]$. Les courbes $(\Delta L/L)_{[100]}(\tau)$ et $(\Delta L/L)_{[010]}(\tau)$ obtenues (figures 35 et 36) montrent un bon accord avec les résultats expérimentaux de LOOMIS $[10]$. Les écarts, surtout dans la direction $[010]$, peuvent être dus à la précision des mesures, que nous ne connaissons pas et au fait que nous avons négligé l'effet des cavités.

La courbe théorique $(\Delta L/L)_{100}(\tau)$ présente bien le "temps" d'incubation de la décroissance ($\tau \simeq 3 \cdot 10^{-7}$). Cette décroissance d'autre part, est

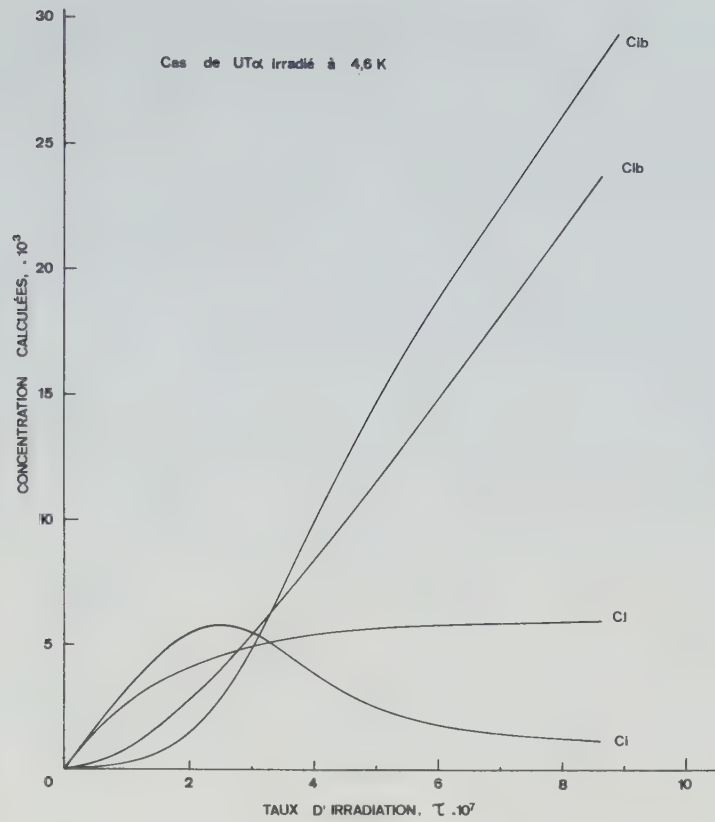


Figure 33 - Concentrations théoriques des différents types de défauts en fonction de la dose $C_i(\tau)$; $C_l(\tau)$; $C_{ib}(\tau)$ et $C_{lb}(\tau)$.

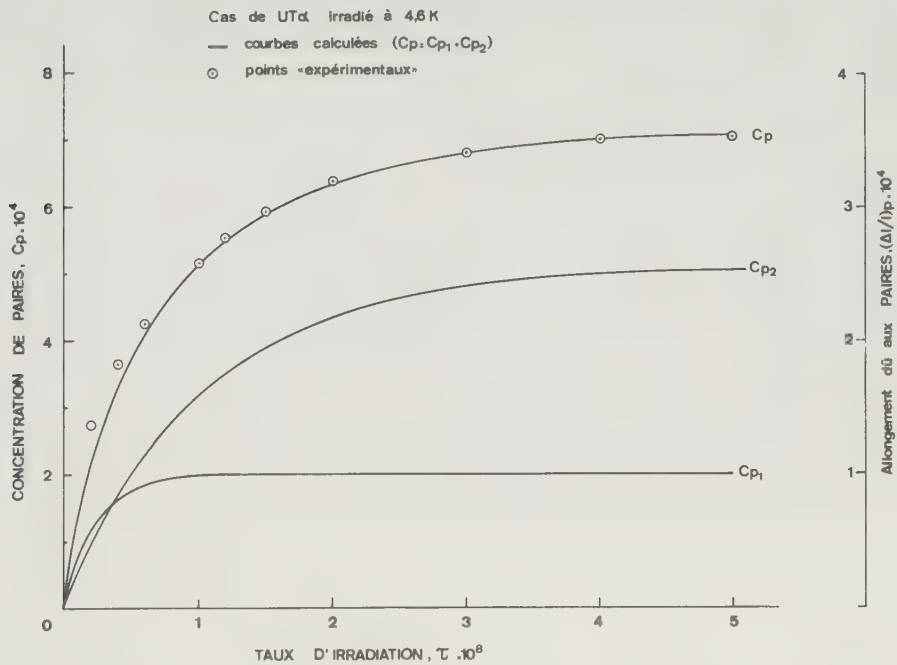


Figure 34 - Concentrations théoriques des paires de Frenkel en fonction de la dose $C_{p1}(\tau)$; $C_{p2}(\tau)$ et $C_p(\tau) = C_{p1}(\tau) + C_{p2}(\tau)$, dans le cas de $UT\alpha$ irradié à 4,6 K. Pour la signification des points "expérimentaux" voir Annexe III.

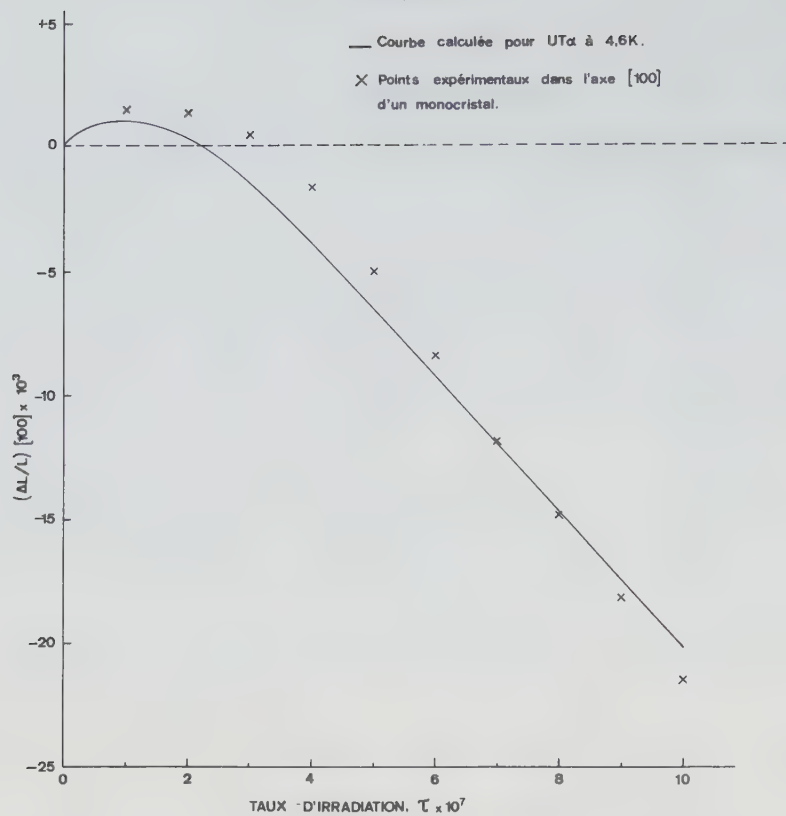


Figure 35 - Variation théorique de longueur dans l'axe [100] d'un monocristal comparée aux mesures de LOOMIS.

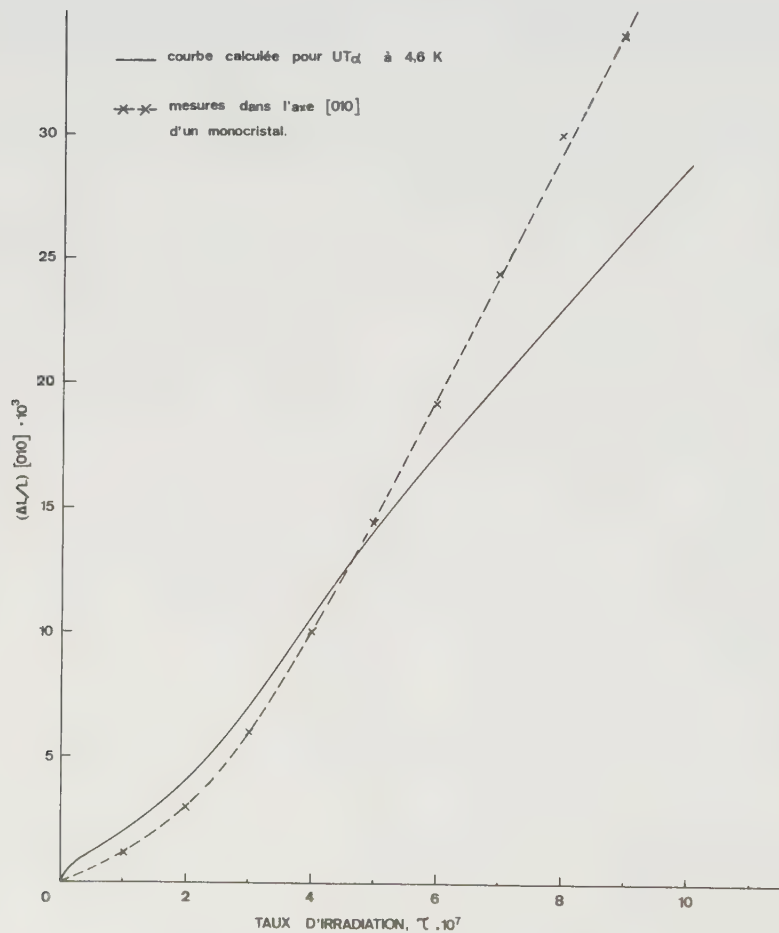


Figure 36 - Variation théorique de longueur dans l'axe [010] d'un monocristal comparée aux mesures de LOOMIS.

linéaire pour $\tau > 5 \cdot 10^{-7}$. Pour nos fils polycristallin de forte texture [010] on peut donc prévoir une réduction de diamètre proportionnelle à la dose à partir de $\tau = 5 \cdot 10^{-7}$. Ceci justifie la correction de section du facteur de forme que nous avons faite (annexe II).

IV.1.4.2. - Variations de longueur de U T α irradié à 36 K.

Dans ce cas le modèle s'applique encore puisque l'on obtient une assez bonne superposition des courbes $\Delta L/L (\tau)$ théorique et expérimentale (figure 37) pour les valeurs suivantes des paramètres :

$$l(0) = 31\,500 \quad V_1 = 10^{-16} \text{ cm}^3 \quad h_i = 1 \quad h_l = 0,5 \quad h_p = 1,5$$

$$b = 50 \quad m = 20 \quad \text{d'où } i(0) = 30\,500.$$

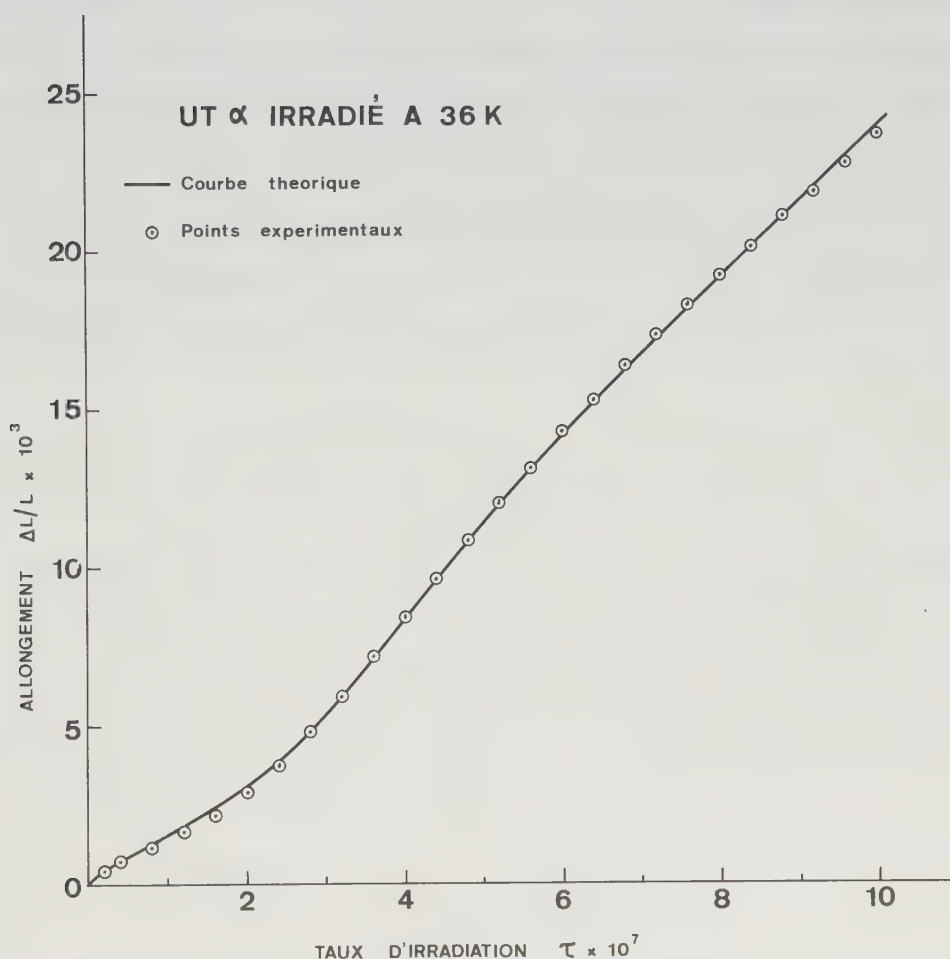


Figure 37 - Variations théoriques de longueur pour UT α irradié à 36 K comparées aux points expérimentaux.

On ne retrouve que la catégorie des paires moins proches

$$p_2(o) \simeq 50\,000 \quad \text{et} \quad V_2 = 3,5 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^3$$

les paires très proches, créées à raison de 80 000 paires par fission à 4,6 K, sont instables à 36 K et s'éliminent dès leur formation. Par contre si le taux de création des paires moins proches est le même qu'à 4,6 K, leur stabilité est sans doute plus faible à 36 K d'où un volume de recuit plus élevé ; la figure 38 montre la variation de concentration de ces paires en fonction du taux d'irradiation (l'obtention des points "expérimentaux" est expliquée en annexe III). Leur concentration atomique est saturée à $2,93 \cdot 10^{-4}$ pour $\tau \geq 3 \cdot 10^{-8}$.

On peut remarquer cependant, que à partir de $\tau = 9 \cdot 10^{-7}$ la courbe $\Delta L/L(\tau)$ calculée s'écarte légèrement de la courbe mesurée (figure 37). En effet le coefficient de croissance mesuré est $G_i^\infty = 21\,500$, ce qui donne $l_b = l(o) = 28\,600$ alors que le coefficient calculé est $G_i^\infty = 23\,700$. En fait, dans notre modèle, les recuits thermiques n'apparaissent que par la diminution du taux de création des défauts ($l(o)$ à 36 K $<$ $l(o)$ à 4,6 K). Ce qui revient à dire que les recuits thermiques ont la même importance tout au long de l'irradiation. En réalité leur importance augmente certainement avec le taux d'irradiation. Ce qui peut se traduire par une diminution du

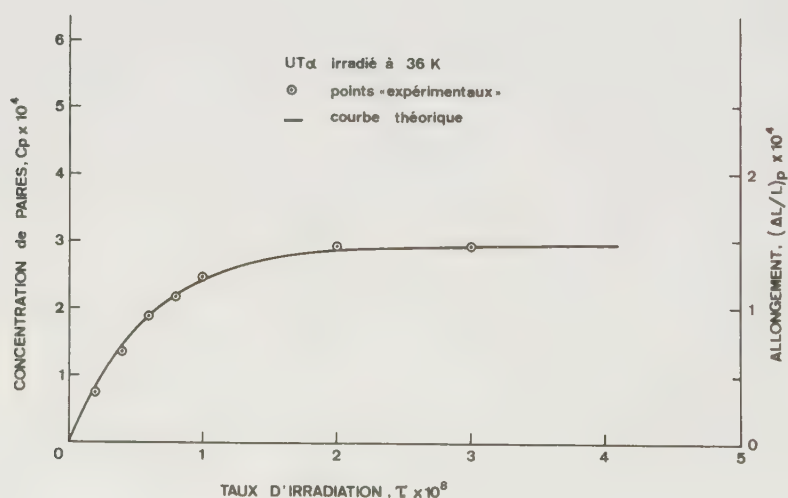


Figure 38 - Variation théorique de la concentration en paires de Frenkel en fonction de la dose $C_{p2}(\tau)$, dans le cas de UTα irradié à 36 K, en bon accord avec les points "expérimentaux" (voir Annexe III).

taux de création de défauts au cours de l'irradiation - dans un rapport $\frac{28\ 600}{31\ 500}$
en fin de l'irradiation à 36 K -

En résumé, on peut dire que notre modèle s'adapte bien aux variations de longueur de l'uranium sous irradiation et par conséquent que les hypothèses formulées rendent parfaitement compte du phénomène de croissance pour des températures inférieures à 40 K. On peut prévoir que ce modèle est insuffisant pour expliquer les variations de longueurs à plus hautes températures. Cependant l'influence de la température se dégage de la comparaison des résultats théoriques obtenus à 4,6 K et à 36 K, rassemblés dans les tableaux III et IV.

IV.2 - Autres interprétations

IV.2.1. - Variations de résistivité électrique

Les valeurs obtenues pour les paramètres $l(o)$, $i(o)$, m et b montrent bien que les défauts créés par fission aux faibles doses sont essentiellement ponctuels, ce que laissait prévoir le fort accroissement de résistivité en début d'irradiation, et le recuit presque total de l'accroissement de résistivité vers 90 K après une irradiation à $\tau = 5.10^{-9}$ (figure 15).

De plus, dans ce domaine des faibles doses, les variations de concentration des interstitiels libres et de lacunes en zones sont pratiquement identiques (la figure 33 montre que $C_i(\tau) \simeq C_l(\tau)$ pour $\tau < 5.10^{-8}$).

On peut donc assimiler les défauts ponctuels créés en début d'irradiation à des paires de Frenkel. Et à l'aide des concentrations calculées (C_p , C_i et C_l) et de la relation 3-13 on peut espérer trouver la résistivité de ces paires, de telle sorte que la courbe théorique $\Delta\rho(\tau)$ obtenue coïncide avec les résultats expérimentaux (figure 40).

On obtient ainsi :

$$\begin{aligned} \rho_p &= 22 \ \mu\Omega\text{cm} \quad / \text{ at } \% \text{ à } 4,6 \text{ K} \\ \text{et } \rho_p &= 20 \ \mu\Omega\text{cm} \quad / \text{ at } \% \text{ à } 36 \text{ K} \end{aligned}$$

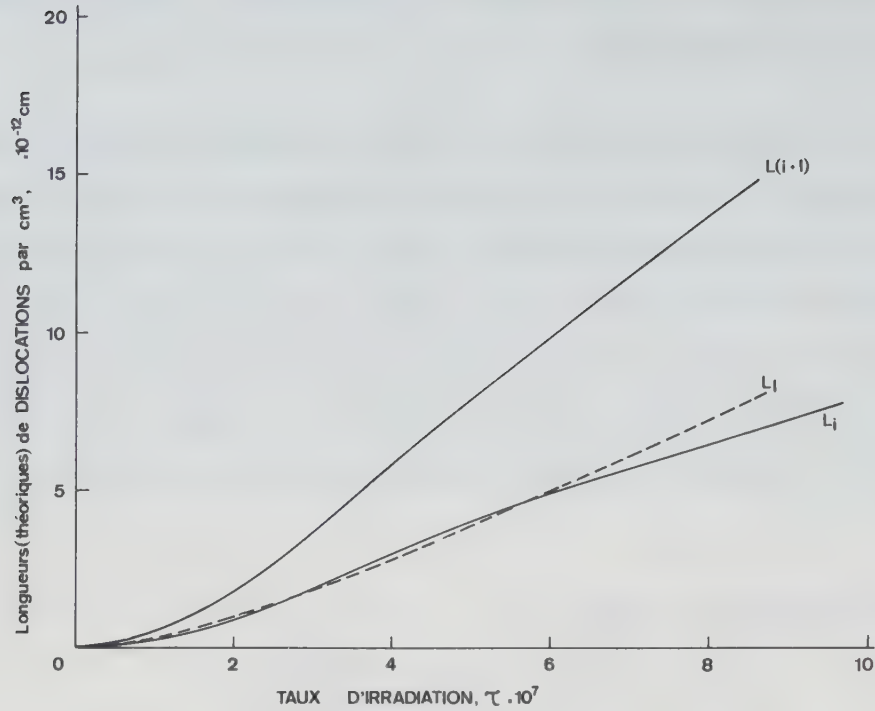


Figure 39 - Longueur des boucles interstitielles L_i et lacunaires L_l et longueur totale $L_i + L_l$ de boucles, par volume unité en fonction du taux d'irradiation τ .

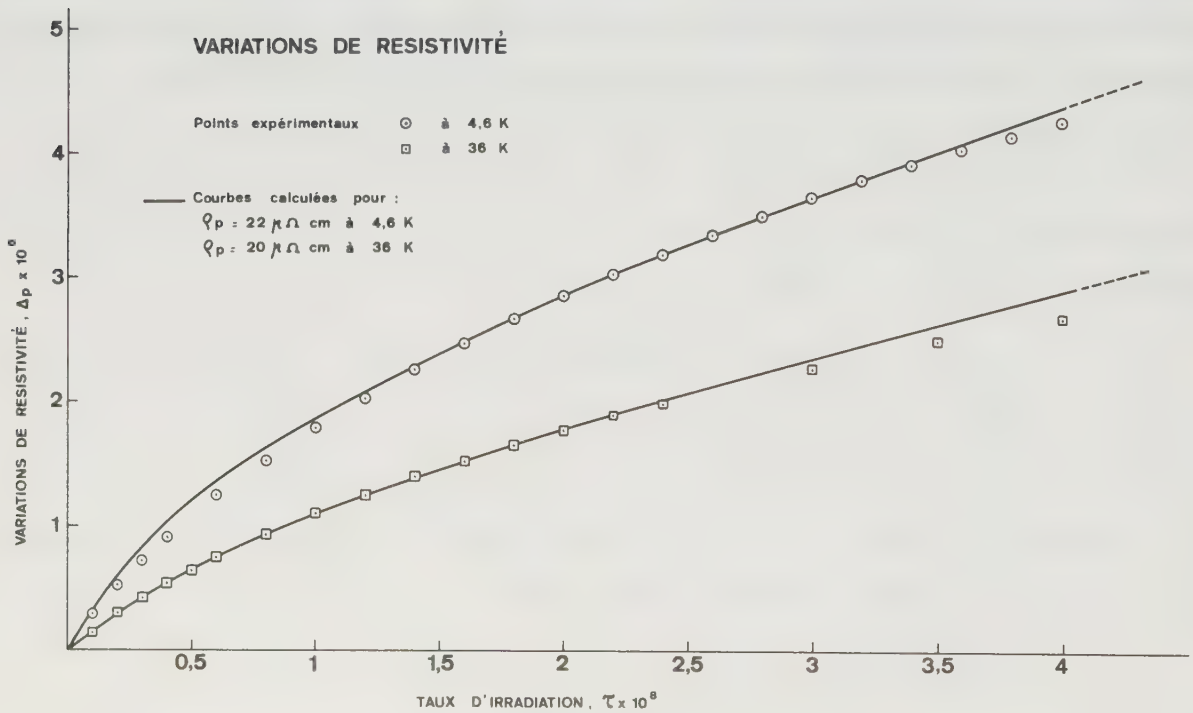


Figure 40 - Variations théoriques de résistivité de $UT\alpha$ irradié à 4,6 K ($\rho_p = 22 \mu\Omega\text{cm}$) et 36 K ($\rho_p = 20 \mu\Omega\text{cm}$) comparées aux variations expérimentales en début d'irradiation.

Ces valeurs sont à comparer avec la valeur de $25 \mu\Omega\text{cm}$ donnée par la règle empirique de LUCASSON - WALKER.

La différence entre les valeurs à 4,6 K et 36 K n'est peut-être pas significative compte tenu des approximations faites dans le modèle, néanmoins on peut dire qu'elle va dans le sens de l'écart à la loi de MATTHIESSEN observée par JOUSSET [42].

Pour la valeur de 4,6 K, on peut estimer la part qui revient aux interstitiels et aux lacunes en examinant le recuit après irradiation (figure 18).

Nous savons que les paires très proches se recombinent à des températures inférieures à 36 K, ce qui est confirmé par le premier stade de recuit de la résistivité. Dans le même domaine de température, la longueur augmente jusqu'à un maximum vers 40 K. (Cette augmentation de longueur a été également observée par d'autres auteurs [58]), ce qui signifie que des interstitiels migrent sur les boucles de même nature. Entre 40 et 50 K, le deuxième stade de la résistivité et la diminution de longueur montrent que les paires moins proches se recuisent à leur tour.

Le recuit total des paires proches entraîne une diminution de résistivité $\Delta\rho = 100 \rho_p C_p \simeq 1,5 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$ ($\rho_p = 22 \cdot 10^{-6} \Omega\text{cm}$ et $C_p = 7,1 \cdot 10^{-4}$) ce qui correspond bien au recuit de résistivité à 50 K.

Les interstitiels qui migrent entre 5 et 40 K ont donc une résistivité négligeable en plus d'une faible énergie de migration, il s'agit certainement d'interstitiels rassemblés en amas au voisinage des boucles.

A 50 K, $\Delta L = \Delta L_0$, c'est-à-dire que la diminution de longueur due à l'élimination des paires proches est compensée par l'augmentation de longueur due aux amas interstitiels qui nourrissent les boucles. D'où la relation :

$$\frac{h_p}{3} C_p = 0,772 C_{ia} - \frac{1}{3} C_{ia} \quad (h_p = 1,5, C_p = 7,1 \cdot 10^{-4})$$

et la concentration de ces interstitiels en amas $C_{ia} \simeq 8 \cdot 10^{-4}$. La concentration d'interstitiels après irradiation étant de $12 \cdot 10^{-4}$, il reste une concentra-

tion $C_i \simeq 4.10^{-4}$ d'interstitiels libres qui migrent entre 50 K et 100 K sur les puits lacunaires. L'accroissement résiduel de résistivité à 50 K, en négligeant la résistivité des boucles s'écrit donc :

$$\Delta\rho = 100 (\rho_i C_i + \rho_l C_l) = (8,4 - 1,5)10^{-6} \Omega\text{cm}$$

$$\text{avec } C_i \simeq 4.10^{-4} \text{ et } C_l = 5,95.10^{-3}$$

En prenant $\rho_i + \rho_l = \rho_p = 22.10^{-6} \Omega\text{cm}$, on trouve :

$$\rho_i \simeq 12 \mu\Omega\text{cm} \text{ et } \rho_l \simeq 10 \mu\Omega\text{cm}.$$

IV-2.2. - Influence de la température

Bien que l'influence de la température ne soit pas le but principal de notre étude, nous pouvons avoir une idée du rôle joué par ce paramètre d'irradiation.

- 4,6 K < T K < 40 K

Les tableaux III, IV et V montrent que lorsque la température augmente :

- le taux de création de défauts diminue ce qui affaiblit la croissance et l'accroissement de résistivité,
- l'absorption des interstitiels par les boucles de même nature (K) augmente ce qui était prévisible,
- le volume V_l augmente.

La température active donc la précipitation des défauts en boucles de dislocation. Par contre elle retarde certainement l'état d'équilibre des défauts entre eux, à cause de l'augmentation des recuits thermiques de défauts de "signes" opposés.

Il semble que la température influence peu les paramètres m , b , h_i et h_l du moins dans le domaine considéré (4,6 - 36 K).

T. K.	$l(0) \times 10^4$	$i(0) \times 10^4$	$p_1(0) \times 10^4$	$p_2(0) \times 10^4$	$V_1 \text{ cm}^3$	$V_2 \text{ cm}^3$	$V_1 \text{ cm}^3$	h_i	h_l	b	m	K
4,6	3,46	3,31	8	4,9	$8,3 \cdot 10^{-15}$	$2 \cdot 10^{-15}$	$6 \cdot 10^{-17}$	1	0,5	100	15	$9 \cdot 10^{-29}$
36	3,15	3,05	0	5	-	$3,5 \cdot 10^{-15}$	10^{-16}	1	0,5	50	20	$1,2 \cdot 10^{-28}$

TABLEAU III

Valeurs des différentes constantes trouvées à 4, 6 K et 36 K

T. K.	C_{pl}	C_{p2}	C_i	C_l	C_{ib}	C_{lb}	$\Delta L/L$	$\Delta \rho_{\mu\Omega\text{cm}}$
4,6	$2 \cdot 10^{-4}$	$5,1 \cdot 10^{-4}$	$1,8 \cdot 10^{-3}$	$5,8 \cdot 10^{-3}$	$1,89 \cdot 10^{-2}$	$1,49 \cdot 10^{-2}$	$1,626 \cdot 10^{-2}$	8, 32
36	-	$2,93 \cdot 10^{-4}$	$1,93 \cdot 10^{-3}$	$3,27 \cdot 10^{-3}$	$1,69 \cdot 10^{-2}$	$1,56 \cdot 10^{-2}$	$1,412 \cdot 10^{-2}$	5, 64

TABLEAU IV

Valeurs des concentrations de défauts, accroissements de longueur et de résistivité pour $\mathcal{C} = 6 \cdot 10^{-7}$ à 4,6 K et 36 K.

T. K.	$\rho_p \mu\Omega\text{cm}$	$L_i + L_l \text{ cm}^3$	$\bar{D}_0 \text{ Å}$	l_0	a_0
4,6	22	$9,8 \cdot 10^{12}$	≈ 50	126	275
36	20	$7,136 \cdot 10^{12}$	≈ 70	210	150

TABLEAU V

Résistivité des défauts, population des zones lacunaires et longueur totale de boucles pour $\mathcal{C} = 6 \cdot 10^{-7}$, à 4,6 K et 36 K.

- Températures plus élevées

La croissance diminue toujours avec la température pour $T > 40$ K. Les recuits thermiques en effet deviennent de plus en plus importants. Nous avons vu par exemple lors de l'examen des recuits isochromes après irradiation, qu'à partir de 50 K les interstitiels libres migrent sur les zones lacunaires ou sur les boucles lacunaires.

Enfin pour des températures allant de 80 à 100 K, la nucléation de boucles peut se faire en l'absence de contraintes donc en dehors des cascades de déplacement $[11]$. Des boucles interstitielles par exemple peuvent être nucléées avec un vecteur de BURGERS $[100]$. Dans ce domaine de températures les boucles se déplacent facilement sur leur cylindre de glissement $[59]$. La rencontre -devenue possible- de boucles interstitielles et lacunaires de même vecteur de BURGERS $[100]$ provoque alors leur élimination et une diminution de croissance. On peut expliquer ainsi la tendance à la saturation de notre courbe $\Delta L / L (\tau)$ à température ordinaire. (Rappelons que J. LETEURTRE $[9]$ a trouvé une saturation de la longueur des boucles pour $\tau > 6.10^{-7}$ à 300 K).

Nous n'avons pas fait de mesures de résistivité à 77 K et à 300 K. Par contre l'irradiation du monocristal à 64 K apporte quelques renseignements. A cette température les défauts ponctuels existants sont essentiellement des lacunes. Comme les boucles n'ont pas d'effet dans la direction $[001]$, les coefficients initiaux sont donnés par :

$$G_0 = \frac{h_1}{3} l(0) \quad \text{et} \quad R_0 = 100 \rho_1 l(0).$$

Les mesures donnent $G_0 \simeq 4\,600$ et $R_0 \simeq 70$.

En prenant $h_1 = 0,5$, on trouve $l(0) = 27\,600$ et

$$\rho_1 \simeq 25.10^{-6} \, \Omega\text{cm} \text{ à } 64 \text{ K.}$$

IV.2.3. - Influence des défauts d'écrouissage

Les défauts préexistants dans la matrice (impuretés, dislocations,

macles etc...) jouent un rôle dans le phénomène de croissance, que l'on peut expliquer par la rupture des focalisations et par la décanalisation des primaires qu'ils entraînent.

- Collisions focalisées

Si un atome primaire (premier atome choqué) frappe le "premier" atome d'une rangée atomique, parallèlement à la direction cristallographique de cette rangée, une succession de chocs se propagent dans la direction considérée : c'est le choc focalisé.

SILSBEE [60] a montré que ce mécanisme pouvait absorber une fraction importante de l'énergie dissipée et donnait naissance à une lacune en début de chaîne et un interstitiel très éloignés en fin de chaîne. Plus la rangée est dense, plus le choc est focalisé ; de telles focalisations ont été mises en évidence par THOMSON [61].

Y. QUERE [62] résume l'effet des collisions, en une création d'un nombre de défauts inférieur à celui qu'il y aurait sans focalisation et en une localisation des interstitiels à grandes distances des atomes heurtés en début de chaîne.

BUCKLEY [63] a montré quel rôle pouvait jouer les chocs focalisés dans la croissance. Il a irradié dans les mêmes conditions trois échantillons recuits : les deux premiers étant constitués par du titane et du zirconium purs et le troisième par un alliage de ces deux métaux (Ti 50 - Zr 50). Il a observé de la croissance sur les deux échantillons de métaux purs - dans lesquels la focalisation est facile - alors que l'échantillon d'alliage, où la focalisation est faible, ne croît pas. Dans le cas de l'alliage les défauts sont en grande partie des paires proches et rien ne les empêche de se recombinaison thermiquement. Dans les autres cas les interstitiels bien qu'ils soient moins nombreux sont en grande partie très éloignés des lacunes, ce qui augmente leur stabilité. Il suffirait que les défauts soient "gelés" ou "piégés" par des puits (très basse température d'irradiation, ou présence d'impuretés, de dislocations, de macles etc...) pour que se soit le contraire, c'est-à-dire que la focalisation réduise la croissance.

- Atomes canalisés

Les primaires peuvent se propager dans le réseau, à l'intérieur des canaux formés par les rangées denses : c'est la canalisation. Des expériences de NELSON et THOMPSON [64] montrent que dans le cuivre, des primaires canalisés possédant une énergie de plusieurs dizaines de keV, se ralentissent sans création de défauts. On peut donc dire que pour une même énergie dissipée dans le réseau, s'il y a focalisation et canalisation, le nombre de défauts créés est plus faible mais de stabilité plus grande, notamment la distance qui sépare un interstitiel de sa lacune est plus grande.

On doit donc s'attendre à un taux de création de défauts plus important dans l'uranium écroui comparativement à l'uranium recuit.

Mais la quantité d'impuretés contenue dans l'uranium, technique utilisée ($5 \cdot 10^{-3}$ impuretés/atome) limite la focalisation et la canalisation, aussi bien dans $UT\alpha$ que dans UTe .

En début d'irradiation, une fission laisserait alors à peu près autant de défauts dans les deux cas. Par contre les défauts "piégés" par les dislocations d'écrouissage ont une stabilité accrue et l'on peut dire que chaque fission crée davantage de défauts stables dans UTe . Ceci expliquerait que les coefficients de croissance initiaux G_0 , qui dépendent essentiellement du taux de création de défauts ponctuels, soient du même ordre de grandeur à basses températures et que le coefficient initial de UTe diminue moins rapidement que celui de $UT\alpha$ quand la température augmente.

D'autre part, les défauts accumulés sur les dislocations d'écrouissage peuvent les enrouler en spirales dont la fermeture donnerait des boucles de dislocation [32]. La condensation des défauts en boucle serait donc plus importante que celle prévue par notre modèle. Il suffit de se reporter aux résultats obtenus avec UTe irradié à 4,6 K :

pour $\tau > 3 \cdot 10^{-7}$ la croissance est linéaire, on peut alors écrire :

$$i_b(\tau) = l_b(\tau) \text{ et } G_i^\infty = 0,8 k i(\tau) = 27\,500$$

$$\text{d'où : } i(\tau) = l_b(\tau) \simeq 55\,000$$

au lieu de 35 000 dans $UT\alpha$.

La condensation en boucle est également plus rapide, ce qui entraîne une saturation plus rapide de la concentration de défauts ponctuels et par conséquent un accroissement de résistivité plus faible.

Nous concluons en disant que chaque fission laisse davantage de défauts stables dans une matrice écrouie. On conçoit bien alors que, à texture égale, la croissance de l'uranium écroui soit plus forte que celle de l'uranium recuit et que le rapport $G_i [010] (UTe) / G_i [010] (UT\alpha)$ augmente avec la température d'irradiation ce que montrent les résultats rassemblés dans le tableau VI.

T. K.	$G_i^\infty [010] (UT\alpha)$	$G_i^\infty [010] (UTe)$	$\frac{G_i^\infty [010] (UTe)}{G_i^\infty [010] (UT\alpha)}$
4,6	28 000	47 000	1,7
40	14 000	47 000	3,3
77	933	8 160	8,75
313	212	5 312	25

TABEAU VI

Coefficients de croissance linéaires (fortes doses) dans la direction $[010]$ pour l'uranium recuit et écroui et leur rapport, à différentes températures.

CONCLUSIONS GENERALES

Le phénomène de croissance de l'uranium sous irradiation, analysé initialement d'un point de vue purement technologique, afin de résoudre les problèmes capitaux que posait la déformation spectaculaire de ce combustible nucléaire, fut par la suite l'objet d'études fondamentales poussées. Ces études faisaient faire un grand pas vers la compréhension du phénomène, en soulignant notamment le rôle des boucles de dislocations. A ce stade, seules les mesures en cours d'irradiation pouvaient apporter des éléments nouveaux, d'où le but de cette étude.

La mise au point d'une capsule d'irradiation nous permettait de faire des mesures simultanées de longueur (à 0,1 micron près) et de résistivité électrique sous flux. On a pu constater ainsi que le coefficient de croissance dépendait du taux de combustion, d'où la notion de coefficients instantanés :

$$G_i = \frac{d}{d\tau} (\Delta L/L) \quad \text{pour la croissance}$$
$$\text{et } \mathcal{R}_i = \frac{d}{d\tau} (\Delta \rho) \quad \text{pour la résistivité.}$$

La courbure négative en début d'irradiation des courbes $\Delta L/L(\tau)$ et $\Delta \rho(\tau)$ obtenues à température ordinaire laissant supposer l'importance des défauts ponctuels dès les premières fissions, a imposé des mesures à très basses températures.

L'utilisation de capteurs de déplacement ainsi que le dispositif automatique d'irradiation à très basses températures de Fontenay-aux-Roses, ont permis d'obtenir des résultats précis et reproductibles.

Nous avons établi les relations qui lient d'une part, les accroissements de longueur et de résistivité aux concentrations des différents défauts et d'autre part, les coefficients instantanés de croissance et de résistivité aux nombres de défauts supplémentaires laissés par une fission.

Nous avons proposé un modèle rendant compte des résultats expérimentaux et qui repose sur les hypothèses suivantes :

- création uniforme au cours du temps, de paires de Frenkel plus ou moins proches, d'interstitiels libres, de lacunes en zones et de petits germes de boucles interstitielles,
- absorption par les boucles interstitielles d'interstitiels libres proportionnelle à leur concentration et à la longueur totale des boucles,
- nucléation de boucles lacunaires par la superposition de deux zones lacunaires.

Nous avons pu tracer les variations de concentration des différents types de défauts et des courbes théoriques d'allongement en fonction de la dose. Ces courbes épousent bien la forme typique des courbes expérimentales d'allongement, à savoir :

- courbure initiale négative due aux paires proches ;
- deux points d'inflexion aux doses intermédiaires dus au grossissement des boucles interstitielles et à la nucléation retardée des boucles lacunaires,
- une partie linéaire à fortes doses correspondant à la condensation en boucles de dislocation de tous les défauts créés, en nombre constant par fission, avec autant d'interstitiels que de lacunes.

La superposition des courbes théoriques et expérimentales, en ce qui concerne la valeur des paramètres les plus importants, donne les résultats suivants :

- à 4,6 K

Création par fission de :

33 100 interstitiels libres,

100 germes de boucles contenant chacun 15 interstitiels,

34 600 lacunes en zones avec un volume de condensation

$$V_1 = 6.10^{-17} \text{ cm}^3,$$

80 000 paires très proches avec un volume de recuit

$$V_1 = 8,3.10^{-15} \text{ cm}^3,$$

49 000 paires moins proches avec un volume de recuit

$$V_2 = 2.10^{-15} \text{ cm}^3,$$

et un volume de formation de 1,5 volume atomique pour une paire de Frenkel, de 1 volume atomique pour un interstitiel, 0,5 volume atomique pour une lacune.

- à 36 K

Création par fission de :

30 500 interstitiels libres,

50 germes de boucles contenant chacun 20 interstitiels,

31 500 lacunes en zone avec un volume de condensation

$$V_1 = 10^{-16} \text{ cm}^3,$$

50 000 paires "moins" proches avec un volume de recuit

$$V_2 = 3,5.10^{-15} \text{ cm}^3.$$

Absence de paires très proches instables à cette température.

Et les mêmes volumes de formation qu'à 4,6 K.

Enfin l'étude des courbes de résistivité aux faibles doses, a permis de connaître la résistivité d'une paire de Frenkel, soit $22.10^{-6} \text{ ohm.cm/at } \%$ à 4,6 K et $20.10^{-6} \text{ ohm.cm/at } \%$ à 36 K.

Les valeurs tout à fait raisonnables trouvées pour toutes ces constantes montrent que le modèle choisi rend bien compte du phénomène de croissance à basses températures.

Il serait intéressant cependant de pouvoir mesurer les variations de concentration de défauts en fonction du taux d'irradiation, pour consolider ou améliorer le modèle qui ne tient pas compte, ni des recuits d'irradiation, ni des recuits thermiques. Pour cela il serait bon d'effectuer simultanément des mesures de longueur et de paramètres cristallins ; ainsi que des mesures plus précises de longueur et de résistivité dans l'axe $[001]$ de monocristaux ou bien sur de l'uranium trempé β , à température ordinaire par exemple. On pourrait alors dégager le rôle des défauts ponctuels.

Enfin des irradiations aux électrons à basses températures pourraient nous renseigner sur le volume de formation , la résistivité, l'énergie seuil de déplacement et sur l'isotropie de gonflement des défauts ponctuels.

Nous signalerons pour conclure que nos dispositifs expérimentaux peuvent ouvrir la voie à d'autres études telles que le gonflement, le fluage sous irradiation etc...

BIBLIOGRAPHIE

- [1] S.H. PAINE et J.H. KITTEL -
1ère Conf. Inter. de Genève (1955), vol. 7 p. 445-517.
- [2] S.F. PUGH -
1ère Conf. Inter. de Genève (1955), vol. 7 p. 441.
- [3] L.L. SEIGLE et A.J. OPINSKY -
Nuclear Science and Engineering 2 (1960) - 43.
- [4] U. GONSER -
J. Nucl. Mat. 2, (1960) 43.
- [5] a) Y. QUERE, D. ROUBEAU et E. OSTERTAG -
Colloque S.E.E.A., 103 Saclay (1960).
- b) Y. QUERE et J. DOULAT -
Comptes Rendus Ac. Sc. (Paris), 252, (1961) 1305.
- [6] S.N. BUCKLEY -
Rapport A.E.R.E. R-3674 (Mars 1961).
- [7] M.W. THOMPSON -
J. Nucl. Mat. 3, N°3, (1961) 354-356.
- [8] B. HUDSON, K.H. WESTMACOTT et M.J. MAKIN -
Phil. Mag. 75, (1962) 377.
- [9] J. LETEURTRE -
Rapport C.E.A. -R-3607 (1969).
- [10] B.A. LOOMIS et S.B. GERBER -
Phil. Mag. 18, 153, (1968) 539.
- [11] J. LETEURTRE et Y. QUERE -
Dans "Structure Lattice Defects" North-Holland (1971).
- [12] J. LETEURTRE -
Internat. Conf. on vacancies and interstitials in metals.
K.F.A. Jülich p. 808 (1968).
- [13] A. BRENAC -
Thèse Orsay - Série A - N°776 (1971).

- [14] J. MASOUNAVE -
Note C.E.A. -N-1501 - (1971).
- [15] J. PONSOYE -
Rad. Effects 8, 13 (1971).
- [16] J.LETEURTRE, J.L. POUCHOU, L. ZUPPIROLI, A.FRANCOIS
N.HOUSSEAU et J.DURAL - Phys. Letters (sous presse) (1972).
- [17] Y. QUERE et F. NAKACHE -
J. Nucl. Mat. 2, (1959) 203-209.
- [18] Y. QUERE -
J. Nucl. Mat. 9, N°3, (1963) 290-308.
- [19] R.R. CONTE -
Cryogenic Engineering Conference - Boulder - U.S.A. (1966).
- [20] R.R. CONTE et J. DURAL -
Rev. Phys. App. 2, (1967) 1.
- [21] R.R. CONTE -
Rapport C.E.A. -R-3910 (1969).
- [22] R.R. CONTE, J. DURAL et C. WEINBERG -
Note C.E.A. -N-1315 (1970).
- [23] M. CAZABAT et R.R. CONTE -
Communication personnelle (1966).
- [24] R. DOLL, H. MEISSNER, N. RIEHL, H. SCHILLING et
H. SCHMEISSNER -
Z. Angew. Phys. 17, (1964) 321.
- [25] G. BURGER -
Thèse Université de Munich (1965).
- [26] N.B.S. Rapport 9712 (Juil. 1968).
Thermocouples Cu-constantan.
- [27] R.R. CONTE -
Eléments de Cryogénie p. 172 - Edit. Masson - Paris (1970).
- [28] T.H. BLEWITT -
Radiation damage nei Solidi, Scuola Internazionale di Fisica
"Enrico Fermi", XVIII Corso (1962).
- [29] Brookhaven Nat. Lab. 325 - Sec. édit. - Suppl. 1 (1960).
- [30] J. BRISBOIS, M. LOTT et G. MANENT -
Rapport C.E.A. -R-2491.

- [31] C. WEINBERG, R.R. CONTE et J. DURAL -
Note C.E.A. -N-1315 (Juin 1970).
- [32] C. WEINBERG et Y. QUERE -
VIe Colloque de Métallurgie, Saclay (1962).
- [33] B.A. LOOMIS, T.H. BLEWITT, A.C. KLANK, S.B. GERBER -
Appl. Phys. Letters 5, (1964) 135.
- [34] R.R. CONTE, J. DURAL, P. SONIGO -
Rev. Phys. Appl. 3, (1968).
- [35] J.C. JOUSSET -
Phys. Letters 5, 4, (1963) 238.
Acta. Met. 14, (1966) 193-200.
- [36] S.N. BUCKLEY -
Institute of Metals - Symposium on Uranium and Graphite -
London (March 1962) N°6.
- [37] L. LLOYD -
U.S.A.E.C. Report ANL 5972 (1959).
- [38] G.F. SLATTERY et J.A. Mc LEISH -
J. Nucl. Mat. 17, (1965) 192-199.
- [39] R.B. STEWART et V.J. JOHNSON -
A compendium of the properties of materials at low temperatures.
(Phase II).
Wadd Technical Report 60-56 - Part IV (Dec. 1961).
- [40] National Bureau of Standard (N.B.S.)
Technical note 317 (1965).
- [41] G. BURGER, H. WENZL, K. ISEBECK, J.C. JOUSSET et Y. QUERE -
Phys. Letters 16, (1965) 3.
Phil. Mag. 11, (1965) 621.
Xème Colloque de Métallurgie, Saclay (1966).
- [42] J. C. JOUSSET -
Rapport C.E.A. -R-3526 (1968).
- [43] J.C. JOUSSET, A. LUCASSON et P. LUCASSON -
Phys. Letters 12, (1965) 295.
- [44] J.M. ZIMAN -
Adv. Phys. 13, (1964) 89.
- [45] J.G. RIDER et C.T.B. FOXON -
Phil. Mag. 13, 122, (1966) 289.

- [46] R.O. SIMMONS et R.W. BALLUFFI -
Phys. Rev. 117, (1960) 62.
- [47] R.M.J. COTTERILL -
Phil. Mag. 8, (1963) 1937.
- [48] P. LUCASSON et R.M. WALKER -
Phys. Rev. 127, (1962) 113.
- [49] Y. QUERE -
Dans "Défauts ponctuels dans les métaux" p. 40
Edit. Masson et Cie - Paris (1967).
- [50] J.A. DICARLO, C.L. SNEAD et A.N. GOLAND -
Phys. Rev. 178, (1965) 295.
- [51] J. LINDHARD, V. NIELSEN, M. SCHARFF et P.V. THOMSEN
Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. SELSK 33, (1963) 10.
- [52] G.H. KINCHIN, R.F. PEASE -
Reports on Progress in Physics 18, (1955) 1-51.
- [53] J.A. BRINKMAN -
Am. J. Phys. 24 (1956) 246.
- [54] J.B. GIBSON, A.N. GOLAND, A.M. MILGRAM, G.H. VINEYARD -
Phys. Rev. 120 (1960) 1229.
- [55] J.R. BEELER, D.G. BESCO -
J. Appl. Phys. 34 (1963) 2873.
J. Appl. Phys. 35 (1964) 2226.
Phys. Rev. 134 (1964) A 530.
- [56] J.R. BEELER -
Phys. Rev. 150, 2 (1966) 470.
- [57] I.M. TORRENS, M.T. ROBINSON et D.K. HOLMES -
A paraître.
- [58] S. GOLLER, G. VOGL, H. WENZL et J.C. JOUSSET -
Phys. Letters 27 A, N°7 (1968) 408-409.
- [59] B. HUDSON -
Phil. Mag. 10 (1964) 949.
- [60] R.H. SILSBEE -
J. Appl. Phys. 28 (1957) 1246.
- [61] M.W. THOMPSON -
Phil. Mag. 4 (1959) 139.

- [62] Y. QUERE -
"Actions chimiques et biologiques des radiations".
7e série (1964) - Edit. Masson et Cie.
- [63] S.N. BUCKLEY -
Colloque de Harwell (1967).
- [64] R.S. NELSON, M.W. THOMPSON et H. MONTGOMERY -
Phil. Mag. 7 (1962) 80.

Manuscrit reçu le 31 janvier 1972

- ANNEXE I -

DETERMINATION DE LA RELATION LINEAIRE ENTRE G_i ET λ_Δ .

Les coefficients de dilatation thermique et de croissance ont des définitions analogues :

$$\lambda_\Delta = \frac{d}{dT} (\Delta L/L) \quad \text{et} \quad G_i = \frac{d}{d\tau} (\Delta L/L) .$$

On sait que si A, B et C sont les angles que font les trois directions cristallographiques principales d'un petit grain, avec la direction Δ du fil, la dilatation thermique due à ce grain dans la direction Δ est donnée par :

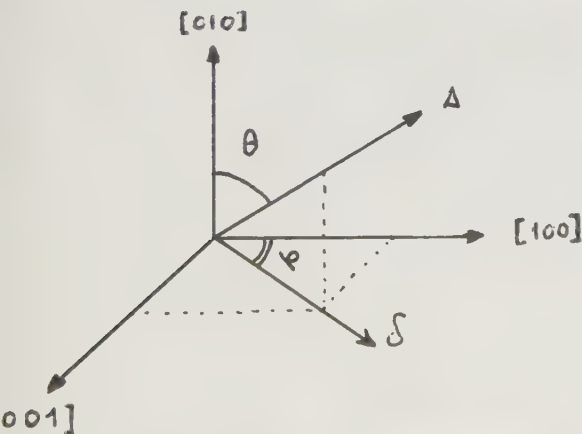
$$\lambda_\Delta = \alpha \cos^2 A + \beta \cos^2 B + \gamma \cos^2 C$$

où α , β et γ sont les coefficients de dilatation thermique suivant $[100]$, $[010]$ et $[001]$.

On aura de même :

$$G_i = G_{100} \cos^2 A + G_{010} \cos^2 B + G_{001} \cos^2 C .$$

Prenons un grain dans un fil d'uranium polycristallin de texture $[010]$.



Si Θ est l'angle de Δ avec $[010]$, δ la projection de Δ sur le plan (010) et φ l'angle entre δ et $[100]$, on peut écrire :

$$\begin{aligned} \lambda_\Delta(\Theta) &= \beta \cos^2 \Theta + \lambda_\delta \cos^2 \left(\frac{\pi}{2} - \Theta \right) \\ &= \beta \cos^2 \Theta + \lambda_\delta \sin^2 \Theta \end{aligned}$$

avec

$$\lambda_\delta = \alpha \cos^2 \varphi + \gamma \sin^2 \varphi$$

Pour l'ensemble des grains dont l'axe $[010]$ fait un angle Θ avec Δ - soit n grains par exemple - le coefficient de dilatation moyen (en négligeant les interactions grains à grains) est donné par :

$$\overline{\lambda}_{\Delta}(\Theta) = \frac{\int_0^n \beta \cos^2 \Theta \, d n}{\int_0^n d n} + \frac{\int_0^n \lambda_{\delta} \sin^2 \Theta \, d n}{\int_0^n d n}$$

$$\text{soit } \lambda_{\Delta}(\Theta) = \beta \cos^2 \Theta + \sin^2 \Theta \frac{\int_0^n \lambda_{\delta} \, d n}{\int_0^n d n}.$$

Si l'on suppose une symétrie de révolution de la répartition des grains autour de l'axe Δ , tous les grains dont l'axe $[010]$ fait un angle Θ avec Δ sont donc répartis uniformément autour de Δ . Ce qui revient à dire que l'on aura toutes les positions possibles de ces grains par rapport à Δ , en effectuant une rotation de δ autour de $[010]$ (φ variant de 0 à π). On a donc :

$$\frac{\int_0^n \lambda_{\delta} \, d n}{\int_0^n d n} = \frac{\int_0^{\pi} \lambda_{\delta} \, d \varphi}{\int_0^{\pi} d \varphi}$$

$$\text{d'où } \overline{\lambda}_{\delta} = \frac{\int_0^{\pi} (\alpha \cos^2 \varphi + \gamma \sin^2 \varphi) \, d \varphi}{\pi} = \frac{1}{2} (\alpha + \gamma).$$

Le coefficient moyen de dilatation dû aux grains " Θ " dans la direction est alors :

$$\begin{aligned} \overline{\lambda}_{\Delta}(\Theta) &= \beta \cos^2 \Theta + \frac{1}{2} (\alpha + \gamma) \sin^2 \Theta \\ &= \left[\beta - \frac{1}{2} (\alpha + \gamma) \right] \cos^2 \Theta + \frac{1}{2} (\alpha + \gamma). \end{aligned}$$

et en posant

$$\lambda_1 = \beta - \frac{1}{2} (\alpha + \gamma) \quad \text{et} \quad \lambda_2 = \frac{1}{2} (\alpha + \gamma).$$

$$\overline{\lambda}_{\Delta}(\Theta) = \lambda_1 \cos^2 \Theta + \lambda_2.$$

Par analogie on peut écrire :

$$\overline{G}_i(\Theta) = g_1 \cos^2 \Theta + g_2$$

$$\text{avec } g_1 = G_i [010] - \frac{1}{2} G_i [100] \quad \text{et} \quad g_2 = \frac{1}{2} G_i [100].$$

(le coefficient de croissance dans la direction $[001]$ est nul).

Soit $m(\Theta)$ une fonction de répartition des axes $[010]$ telle que $m(\Theta) \, d\Theta$ soit le nombre de grains ayant leur axe $[010]$ dans une couronne $\Theta, \Theta + d\Theta$. Il suffit de faire varier Θ de 0 à $\frac{\pi}{2}$, pour avoir le coefficient moyen dû à tous les grains dans la direction Δ .

$$\lambda_{\Delta} = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \overline{\lambda_{\Delta}}(\Theta) m(\Theta) d\Theta / \int_0^{\frac{\pi}{2}} m(\Theta) d\Theta .$$

$$G_i = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \overline{G_i}(\Theta) m(\Theta) d\Theta / \int_0^{\frac{\pi}{2}} m(\Theta) d\Theta .$$

en remplaçant $\overline{\lambda_{\Delta}}(\Theta)$ et $\overline{G_i}(\Theta)$ par leur expression

$$\lambda_{\Delta} = \lambda_1 \int_0^{\frac{\pi}{2}} \cos^2 \Theta m(\Theta) d\Theta / \int_0^{\frac{\pi}{2}} m(\Theta) d\Theta + \lambda_2$$

$$G_i = g_1 \int_0^{\frac{\pi}{2}} \cos^2 \Theta m(\Theta) d\Theta / \int_0^{\frac{\pi}{2}} m(\Theta) d\Theta + g_2 .$$

En éliminant $\int_0^{\frac{\pi}{2}} \cos^2 \Theta m(\Theta) d\Theta / \int_0^{\frac{\pi}{2}} m(\Theta) d\Theta$, entre ces deux relations on trouve :

$$G_i = \frac{g_1}{\lambda_1} \lambda_{\Delta} + (g_2 - \frac{\lambda_2}{\lambda_1})$$

En remplaçant g_1 , g_2 , λ_1 et λ_2 par leur expression

$$G_i = \frac{\lambda_{\Delta} - \frac{\alpha+\beta+\gamma}{3}}{\beta - \frac{\alpha+\beta+\gamma}{3}} G_i [010] + \frac{1}{3} \frac{\beta - \lambda_{\Delta}}{\beta - \frac{\alpha+\beta+\gamma}{3}} (G_i [010] + G_i [100])$$

$$\frac{\lambda_{\Delta} - \frac{\alpha+\beta+\gamma}{3}}{\beta - \frac{\alpha+\beta+\gamma}{3}} = k \quad \text{est le facteur de texture, d'où l'expression}$$

$$G_i = k G_i [010] + \frac{1-k}{3} (G_i [010] + G_i [100])$$

$$= \frac{2k+1}{3} G_i [010] + \frac{1-k}{3} G_i [100] .$$

- ANNEXE II -

CORRECTION DE LA SECTION SUR LE FACTEUR DE FORME.

La résistivité est liée à la résistance par le facteur de forme K_o telle que $\rho = K R$ où $K = \frac{S}{L}$.

A un moment quelconque de l'irradiation, l'accroissement de résistivité est :

$$\Delta \rho_t = K_o R_t - K_o R_o = K_o (R_t - R_o) . \quad (1)$$

si l'on ne tient pas compte de la variation du facteur de forme.

Mais le fil s'allonge sous irradiation alors que sa variation de volume est négligeable. A un instant quelconque le facteur de forme est donc égal à $K = K_o + \Delta K$:

$$\text{où } \frac{\Delta K}{K_o} = \frac{\Delta S}{S} - \frac{\Delta L}{L} \quad \text{et} \quad \frac{\Delta V}{V} = \frac{\Delta S}{S} + \frac{\Delta L}{L} \approx 0$$

Si l'on ne tient pas compte des variations de sections :

$$\frac{\Delta K}{K_o} = - \frac{\Delta L}{L}$$

$$\begin{aligned} \text{On a donc } \Delta \rho_t &= K R_t - K_o R_o = (K_o + \Delta K) R_t - K_o R_o \\ &= K_o \left[\left(1 + \frac{\Delta K}{K_o} \right) R_t - R_o \right] . \end{aligned}$$

$$\text{Soit } \Delta \rho_t = K_o \left[\left(1 - \frac{\Delta L}{L} \right) R_t - R_o \right] . \quad (2)$$

Si l'on tient compte des variations de section $\frac{\Delta S}{S} = - \frac{\Delta L}{L}$ et $\frac{\Delta K}{K_o} = - 2 \frac{\Delta L}{L}$, on aura donc :

$$\Delta \rho_t = K_o \left[\left(1 - 2 \frac{\Delta L}{L} \right) R_t - R_o \right] \quad (3)$$

La courbe $\Delta \rho(\tau)$ devient linéaire pour $\tau > 5.10^{-7}$.

- Sans faire de correction la pente de cette partie linéaire peut s'écrire :

$$P_o = \frac{\Delta \rho_2 - \Delta \rho_1}{\tau_2 - \tau_1} \quad \text{où} \quad \tau_2 > \tau_1 > 5.10^{-7}$$

D'après (1) on a $\Delta \rho_1 = K_o (R_1 - R_o)$ et $\Delta \rho_2 = K_o (R_2 - R_o)$

$$\text{soit :} \quad P_o = \frac{K_o (R_2 - R_1)}{\tau_2 - \tau_1} \quad (4)$$

- En faisant la correction de longueur uniquement :

$$\Delta \rho_1 = K_o \left[\left(1 - \frac{\Delta L_1}{L} \right) R_1 - R_o \right] \quad \text{et} \quad \Delta \rho_2 = K_o \left[\left(1 - \frac{\Delta L_2}{L} \right) R_2 - R_o \right]$$

la pente devient :

$$P_1 = \frac{K_o (R_2 - R_1)}{\tau_2 - \tau_1} - \frac{K_o \left(R_2 \frac{\Delta L_2}{L} - R_1 \frac{\Delta L_1}{L} \right)}{\tau_2 - \tau_1}$$

$$P_1 = P_o - \frac{K_o \left(R_2 \frac{\Delta L_2}{L} - R_1 \frac{\Delta L_1}{L} \right)}{\tau_2 - \tau_1} \quad (5)$$

- Pour faire une correction à la fois de longueur et de section (ce qui est justifié pour $\tau > 5.10^{-7}$ comme nous l'avons souligné. Pour $\tau < 5.10^{-7}$ les corrections sont négligeables car $\Delta L/L$ est encore faible), il faut remplacer $\Delta L/L$ par $2 \Delta L/L$ d'après (3). La pente de $\Delta \rho(\tau)$ pour $\tau > 5.10^{-7}$ est alors :

$$P_2 = P_o - \frac{2 K_o \left(R_2 \frac{\Delta L_2}{L} - R_1 \frac{\Delta L_1}{L} \right)}{\tau_2 - \tau_1} \quad (6)$$

en multipliant (5) par 2 et en groupant avec (6) on trouve :

$$\mathcal{R}_i^\infty = P_2 = 2 P_1 - P_o \quad (7)$$

C'est cette valeur que nous avons portée dans le tableau I.

La plupart de nos mesures donnent :

$$P_o \simeq 1,1 \quad P_1 \simeq 0,75 \quad \text{ce qui donne}$$

$$\mathcal{R}_i^\infty = 2 \times 0,75 - 1,1 = 0,4 \text{ } \Omega\text{cm/unité de } \tau \text{ .}$$

- ANNEXE III -

DETERMINATION DES PARAMETRES $l(o)$, $p_1(o)$, $p_2(o)$, V_1 ET V_2 .

Les relations 3.11 et 3.12 peuvent se mettre sous la forme :

$$\Delta L/L(\tau) = \frac{h_p}{3} C_p(\tau) + (\Delta L/L)'(\tau) \quad (1)$$

avec $(\Delta L/L)'(\tau) = \frac{h_i}{3} C_i(\tau) + \frac{h_l}{3} C_l(\tau) + 0,772 C_{ib}(\tau) - 0,02 C_{lb}(\tau) \quad (2)$

$$G_i = \frac{h_p}{3} p(\tau) + G'_i \quad (3)$$

avec $G'_i = \frac{h_i}{3} i(\tau) + \frac{h_p}{3} l(\tau) + 0,772 i_b(\tau) - 0,02 l_b(\tau) \quad (4)$

L'analyse des équations du modèle (voir tableau II) permet d'écrire les relations suivantes :

- Aux fortes doses,

puisque $C_p = \frac{p_1(o)}{NV_1} + \frac{p_2(o)}{NV_2} + \dots = c^{te}$; $C_l = \frac{l(o)}{2NV_1} = c^{te}$

$$C_i = c^{te} ; C_{ib}(\tau) = l(o)\tau + c^{te} ; C_{lb}(\tau) = l(o)\tau + c^{te}$$

$$p(\tau) = 0 ; i(\tau) \approx l(\tau) \approx 0 \quad \text{et} \quad i_b(\tau) \approx l_b(\tau) \approx l(o)$$

$$\Delta L/L(\tau) = \frac{h_p}{3} \left[\frac{p_1(o)}{NV_1} + \frac{p_2(o)}{NV_2} \dots \right] + (\Delta L/L)'(\tau) = 0,752 l(o)\tau + c^{te} \quad (5)$$

et $G_i = 0,772 i_b(\tau) - 0,02 l_b(\tau) = 0,752 l(o)\tau \quad (6)$

On peut donc trouver $l(o)$ par la mesure de G_i .

- Aux doses intermédiaires :

$$\Delta L/L(\tau) = \frac{h_p}{3} \left[\frac{p_1(o)}{NV_1} + \frac{p_2(o)}{NV_2} \dots \right] + (\Delta L/L)'(\tau) \quad (7)$$

$$G_i(\tau) = G'_i(\tau) \quad (8)$$

- Aux faibles doses

$$\Delta L/L(\tau) = \frac{h_p}{3} C_p(\tau) + (\Delta L/L)''(\tau) \quad (9)$$

$$\text{avec } (\Delta L/L)'' = \left[\frac{h_i}{3} i(o) + \frac{h_l}{3} l(o) + 0,772 m b \right] \tau = G_i'' \cdot \tau \quad (10)$$

$$G_i = \frac{h_p}{3} p(\tau) + G_i'' \quad (11)$$

Il suffit donc de trouver les paramètres V_1 , b , m , K , h_i et h_l (par calcul machine) de telle manière que $(\Delta L/L)'(\tau)$ soit aussi parallèle que possible à la courbe expérimentale, aux moyennes et fortes doses. La différence entre les deux courbes donne $\frac{h_p}{3} C_p(\tau)$. Comme $h_p = h_i + h_l$, on peut tracer une courbe $C_p(\tau)$ semi-expérimentales. (D'où la signification des points "expérimentaux" des figures 34 et 38).

Pour UTα à 4,6 K.

La variation de la concentration en paires de Frenkel, représentée par les points "expérimentaux", a la forme d'une exponentielle qui se sature vers $\tau \simeq 5.10^{-8}$ à la valeur :

$$C_p = \frac{P_1(o)}{NV_1} + \frac{P_2(o)}{NV_2} \dots = 7,1.10^{-4}$$

Si on trace la courbe $\frac{d}{d\tau} C_p = f(C_p)$, on remarque qu'elle est formée de deux parties linéaires 1 et 2 (figure 41) dont le point d'intersection correspond à $\tau = 4.10^{-9}$. La courbe $C_p(\tau)$ est donc la somme de deux exponentielle donnant, l'une la variation de concentration de paires très proches saturée à $\tau = 4.10^{-9}$, et l'autre la variation de concentration de paires moins proches saturée à $\tau = 5.10^{-8}$. Le volume de recuit de ces dernières est donné par la pente de la partie 2. On trouve :

$$V_2 = 2.10^{-15} \text{ cm}^3$$

On peut donc écrire d'après 4.11 :

$$C_p(\tau) = \frac{P_1(o)}{NV_1} \left[1 - \exp(-V_1 N \tau) \right] + \frac{P_2(o)}{9,6.10^7} \left[1 - \exp(-9,6.10^7 \tau) \right]$$

Pour $\tau = 5.10^{-9}$:

$$C_p(\tau) = \frac{P_1(o)}{NV_1} + \frac{P_2(o)}{9,6.10^7} \cdot 0,385 = 3,96.10^{-4}$$

Pour $\tau = 5.10^{-8}$

$$C_p(\tau) = \frac{P_1(o)}{NV_1} + \frac{P_2(o)}{9,6.10^7} = 7,1.10^{-4}$$

De ces deux dernières équation on tire :

$$P_2(o) = 49\,000 \quad \frac{P_2(o)}{NV_2} = 5,1.10^{-4} \quad \text{et} \quad \frac{P_1(o)}{NV_1} = 2.10^{-4}$$

Les valeurs trouvées pour les paramètres (b , m , $l(o)$, $i(o)$, h_i et h_1) donnent $G_o'' \simeq 18\,000$. L'expérience donne $G_o \simeq 82\,500$. On trouve donc d'après (11) :

$$p(o) = 129\,000 \quad \text{d'où} \quad p_2(o) = 80\,000 \quad \text{puisque} \quad p(o) = p_1(o) + p_2(o)$$

Comme la concentration saturée de paires très proches est $\frac{p_1(o)}{NV_1}$ on trouve $V_1 = 8,3 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^3$.

Sur la figure 34 nous avons porté les courbes :

$$C_{p1}(\tau) = 2 \cdot 10^{-4} [1 - \exp(-4 \cdot 10^8 \tau)]$$

$$C_{p2}(\tau) = 5,1 \cdot 10^{-4} [1 - \exp(-9,6 \cdot 10^7 \tau)]$$

et $C_p(\tau) = C_{p1}(\tau) + C_{p2}(\tau)$.

Connaissant les variations théoriques $\frac{h_p}{3} C_p(\tau) = 0,5 C_p(\tau)$ et $(\Delta L/L)'$, on peut donc tracer d'après (1), la courbe théorique globale $\Delta L/L(\tau)$ sur la figure 32.

Pour UT α à 36 K.

Nous avons déterminé $l(o)$, comme les paramètres m , b ... etc, et non par la mesure de G_i . Nous en avons donné la raison en soulignant l'importance des recuits thermiques.

Pour $C_p(\tau)$ nous avons procédé comme pour UT α à 4,6 K. Nous avons trouvé que les points "expérimentaux" se plaçaient bien sur une exponentielle unique de la forme :

$$C_p(\tau) = \frac{p_2(o)}{NV_2} [1 - \exp(-V_2 N \tau)] \quad \text{où}$$

$$p_2(o) \simeq 50\,000 \quad \text{et} \quad V_2 = 3,5 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^3 \quad (\text{figure 38}).$$

On a donc pu tracer la variation de longueur théorique globale sur la figure 37.

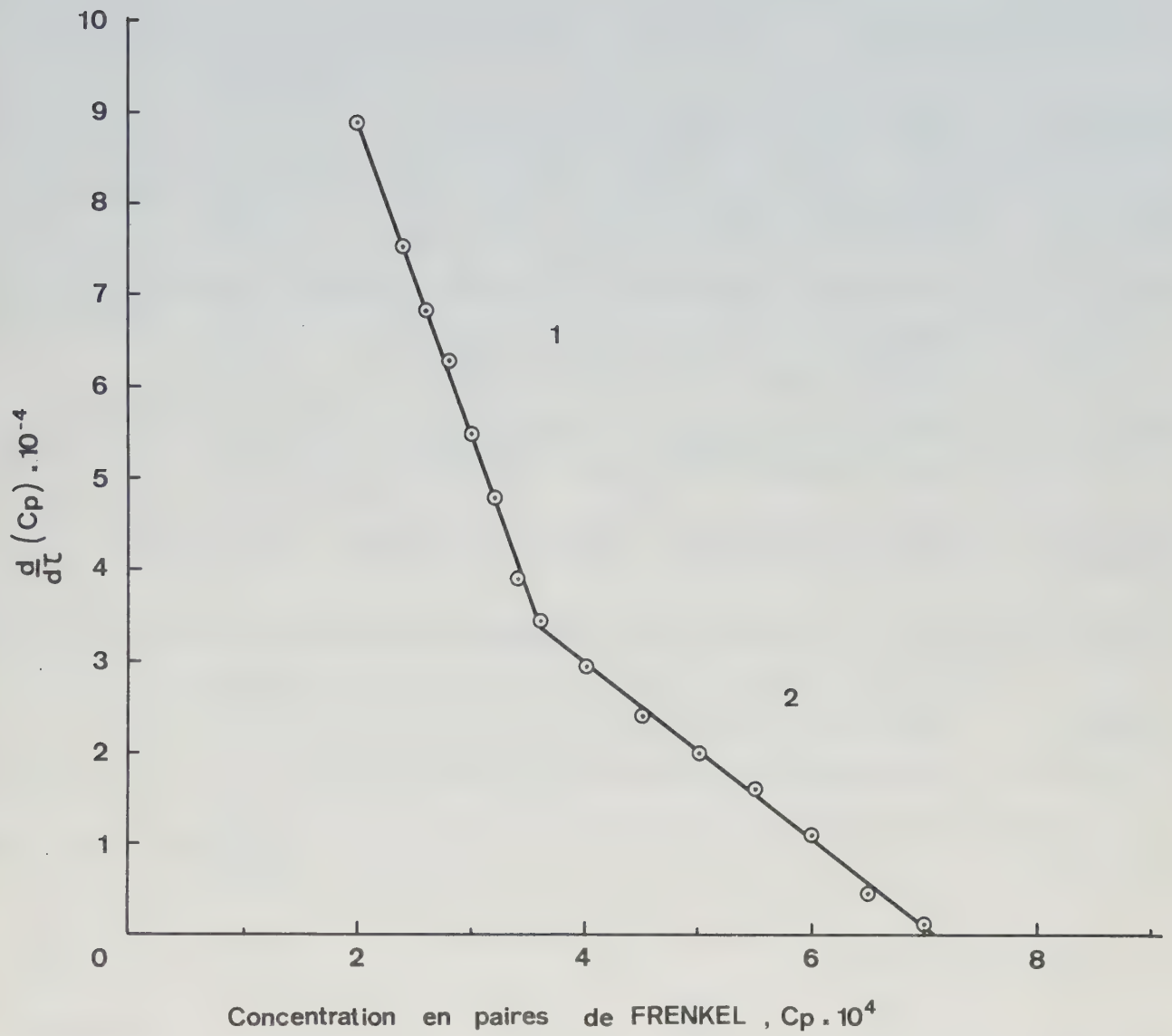


Figure 41 - Courbe $\frac{d C_p}{d \tau} = f(C_p)$ à 4,6 K : la pente de la partie linéaire 2 permet de calculer V_2 (volume de recuit des paires moins proches).

LEGENDE DES FIGURES

- Figure 01 - Maille orthorombique de l'uranium α .
- Figure 1 - Schéma de la boucle d'irradiation à 20 K de Fontenay-aux-Roses.
- Figure 2 - Schéma de l'alimentation du pont de mesure de longueur (PR 9307 Philips).
- Figure 3 - Capsule d'irradiation pour les mesures simultanées de longueur et de résistivité électrique, sous flux.
- Figure 4 - Micrographie d'un $UT\alpha$ (Taille des grains).
- Figure 5a - Diagramme de Laue sur une plaquette monocristalline.
- Figure 5b - Projection stéréographique montrant l'orientation de l'axe C par rapport à l'axe longitudinal de la plaquette.
- Figure 6 - Variation de longueur en fonction du taux d'irradiation ($\Delta L/L(\tau)$) pour $UT\alpha$ et UTe irradiés à température ordinaire (mesures optiques).
- Figure 7 - Courbes $\Delta L/L(\tau)$ pour $UT\alpha$ et UTe irradiés à 77 K (mesures optiques).
- Figure 8 - Courbe $\Delta L/L(\tau)$ pour $UT\alpha$ irradié à température ordinaire et à faibles doses (mesures électriques en flux).
- Figures 9 - Variations de longueur et de résistivité de $UT\alpha$ irradié dans la boucle 20 K.
- Figure 9a - Courbes $\Delta L/L(\tau)$ et $\Delta\rho(\tau)$ à 30 K pour $0 < \tau < 3,5 \cdot 10^{-9}$.
- Figure 9b - Courbes $\Delta L/L(\tau)$ et $\Delta\rho(\tau)$ à 42 K pour $3,5 \cdot 10^{-9} < \tau < 1,5 \cdot 10^{-6}$.

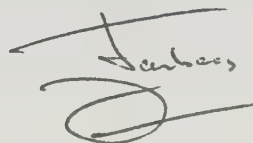
- Figure 10 - Recuits isochrones des variations de la longueur et de la résistivité induites par irradiation à 42 K ($\tau = 1,5 \cdot 10^{-6}$).
- Figure 11 - Variation de longueur et de résistivité de UTe irradié dans la boucle 20 K.
- Figure 11a - Courbes $\Delta L/L(\tau)$ et $\Delta \rho(\tau)$ à 34 K pour $0 < \tau < 6 \cdot 10^{-9}$.
- Figure 11b - Courbes $\Delta L/L(\tau)$ et $\Delta \rho(\tau)$ à 40 K pour $6 \cdot 10^{-9} < \tau < 6,1 \cdot 10^{-7}$.
- Figure 12 - Recuits isochrones des variations de longueur et de résistivité induites par irradiation à 40 K ($\tau = 6,13 \cdot 10^{-7}$).
- Figure 13 - Variation de longueur et de résistivité pour UT α irradié dans la boucle 20 K :
Courbes $\Delta L/L(\tau)$ et $\Delta \rho(\tau)$ à 36 K pour $0 < \tau < 1,72 \cdot 10^{-6}$.
- Figure 14 - Recuits isochrones des variations de longueur et de résistivité induites par irradiation à 36 K après $\tau = 1,72 \cdot 10^{-6}$.
- Figure 15 - Recuits isochrones de UT α après irradiation à 33 K et à faibles doses ($\tau = 5,5 \cdot 10^{-9}$), et après irradiation à 44 K et fortes doses ($\tau = 10^{-6}$).
- Figure 16 - Courbes $\Delta L/L(\tau)$ et $\Delta \rho(\tau)$ correspondant à UT α irradié à 4,6 K et montrant l'influence négligeable du flux instantané ($\frac{d}{d\tau}(\Delta L/L)$ et $\frac{d}{d\tau}(\Delta \rho)$ ne sont pas modifiées quand ϕ augmente d'un facteur 10).
- Figure 17 - Variation de longueur et de résistivité de UT α et UTe irradiés à 4,6 K.
- Figure 18 - Recuits isochrones des variations de longueur et de résistivité induites dans UT α par irradiation à 4,6 K après $\tau = 8,6 \cdot 10^{-7}$.
- Figure 19 - Recuits isochrones des variations de longueur et de résistivité induites par irradiation dans UTe à 4,6 K après $\tau = 1,2 \cdot 10^{-6}$.

- Figure 20 - Variation de longueur $\Delta L/L(\tau)$ et de résistivité $\Delta \rho(\tau)$, le long de l'axe C d'un monocristal d'uranium irradié à 64 K.
- Figure 21 - Variations de G_i et R_i en fonction de τ , à différentes températures.
- Figure 22 - Variations de G_i et R_i en fonction de τ , dans le cas du monocristal irradié à 64 K.
- Figure 23 - Variations de G_i et R_i en fonction de τ , à température ordinaire.
- Figure 24 - Variations de G_i en fonction de $\Delta L/L$, à 4,6 K et 36 K.
- Figure 25 - Variations de R_i en fonction de $\Delta \rho$, à 4,6 K et 36 K.
- Figure 26 - Variation du rapport G_i/R_i en fonction de τ à différentes températures.
- Figure 27 - Schéma expliquant le changement de forme dû aux boucles de dislocations.
- Figure 28 - Emplacement des défauts dans une cascade de déplacements d'après les calculs de BEELER (les carrés blancs représentent les lacunes, les carrés noirs les interstitiels).
- Figure 29 - Schéma représentant le taux de création de défauts avec les notations utilisées.
- Figure 30 - Schéma représentant la croissance des boucles interstitielles.
- Figure 31 - Comparaison des résultats expérimentaux de BUCKLEY avec la droite théorique $G_i = f(\lambda_\Delta)$.
- Figure 32 - Courbe $\Delta L/L(\tau)$ théorique et points expérimentaux dans le cas de $UT\alpha$ irradié à 4,6 K.
- Figure 33 - Concentrations théoriques des différents types de défauts en fonction de la dose $C_i(\tau)$; $C_l(\tau)$; $C_{ib}(\tau)$ et $C_{lb}(\tau)$.

- Figure 34 - Concentrations théoriques des paires de Frenkel en fonction de la dose $C_{p1}(\tau)$; $C_{p2}(\tau)$ et $C_p(\tau) = C_{p1}(\tau) + C_{p2}(\tau)$, dans le cas de UT α irradié à 4,6 K. Pour la signification des points "expérimentaux" voir Annexe III.
- Figure 35 - Variation théorique de longueur dans l'axe $[100]$ d'un monocristal comparée aux mesures de LOOMIS.
- Figure 36 - Variation théorique de longueur dans l'axe $[010]$ d'un monocristal comparée aux mesures de LOOMIS.
- Figure 37 - Variations théoriques de longueur pour UT α irradié à 36 K comparées aux points expérimentaux.
- Figure 38 - Variation théorique de la concentration en paires de Frenkel en fonction de la dose $C_{p2}(\tau)$, dans le cas de UT α irradié à 36 K, en bon accord avec les points "expérimentaux" (voir Annexe III).
- Figure 39 - Longueur des boucles interstitielles L_i et lacunaires L_l et longueur totale $L_i + L_l$ de boucles, par volume unité en fonction du taux d'irradiation τ .
- Figure 40 - Variations théoriques de résistivité de UT α irradié à 4,6 K ($\rho_p = 22 \text{ } \Omega\text{cm}$) et 36 K ($\rho_p = 20 \text{ } \Omega\text{cm}$) comparées aux variations expérimentales en début d'irradiation.
- Figure 41 - Courbe $\frac{dC_p}{d\tau} = f(C_p)$ à 4,6 K : la pente de la partie linéaire 2 permet de calculer V_2 (volume de recuit des paires moins proches).

Vu et approuvé :
Orsay, le 23 novembre 1971

LE VICE PRESIDENT DU CENTRE D'ORSAY:

A handwritten signature in dark ink, appearing to read "Jean-Luc", with a large, stylized flourish below the name.

